FACULTÉ MIXTE DE MÉDECINE ET DE PHARMACIE
DE LYON

Année 1962 — N° 234

MÉTHODES DE CONTROLE DES RADIOÉLÉMENTS UTILISÉS EN MÉDECINE

Travail du Laboratoire de Physique biologique
de la Faculté mixte de Médecine
et de Pharmacie de Lyon

THÈSE

présentée à la Faculté mixte de Médecine et de Pharmacie de Lyon
et soutenue publiquement le 21 Décembre 1962
pour obtenir le grade de Docteur en Médecine

par

Monsieur José BERNARD

Ancien élève de l'Ecole du service de Santé militaire

né le 12 Mars 1937 à ORANGE (Vaucluse)

IMPRIMERIE GUÉRIN
NEUVILLE-SUR-SAONE
(Rhône)

1962

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552306_0056

Méthodes de contrôle des radioéléments utilisés en médecine

Travail du Laboratoire de Physique biologique
de la Faculté mixte de Médecine
et de Pharmacie de Lyon

FACULTÉ MIXTE DE MÉDECINE ET DE PHARMACIE
DE LYON

Année 1962 — N° 234

MÉTHODES DE CONTROLE DES RADIOÉLÉMENTS UTILISÉS EN MÉDECINE

Travail du Laboratoire de Physique biologique
de la Faculté mixte de Médecine
et de Pharmacie de Lyon

THÈSE

présentée à la Faculté mixte de Médecine et de Pharmacie de Lyon
et soutenue publiquement le 21 Décembre 1962
pour obtenir le grade de Docteur en Médecine

par

Monsieur José BERNARD
Ancien élève de l'Ecole du service de Santé militaire
né le 12 Mars 1937 à ORANGE (Vaucluse)

R. UNIV.
BIBLIOTHEEK
LEIDEN

IMPRIMERIE GUÉRIN
NEUVILLE-SUR-SAONE
(Rhône)
1962

FACULTÉ MIXTE DE MÉDECINE ET DE PHARMACIE DE LYON

PERSONNEL DE LA FACULTÉ

Doyen honoraire : M. J. LÉPINE, Membre de l'Institut
Doyen : M. H. HERMANN, Correspondant de l'Institut
Assesseurs : MM. M. LEVRAT, L. REVOL

PROFESSEURS HONORAIRES

MM. COLLET, GUIART, PATEL, LÉPINE, TRILLAT, MOURIQUAND, MAZEL, GARIN, GATÉ, MARTIN, GABRIELLE, SANTY, DUCLOS, GUILLEMINET

PROFESSEURS

Physiologie A	HERMANN	Parasitologie et pathologie exotique	COUDERT
Clinique urologique	CIBERT	Clinique d'oto-rhino-laryngologie et d'audio-phonologie	MOUNIER-KUHN
Physique biologique	PONTHUS (détaché à Beyrouth)	Clinique ophtalmologique	PAUFIQUE
Clinique neuro-psychiatrique et hygiène mentale	DECHAUME	Clinique de dermatologie, syphyligraphie et allergologie.	THIERS
Thérapeutique chirurgicale et chirurgie opératoire	ROCHET	Clinique de pneumo-phtisiologie	BRUN
Chimie organique et toxicologie	CHAMBON	Clinique traumatologique des membres	CREYSSEL
Clinique chirurgicale B	WERTHEIMER	Cancérologie	DARGENT
Clinique médicale B	PAUPERT-RAVAULT	Anatomie pathologique	GUICHARD
Clinique et prophylaxie cardio-vasculaires	FROMENT	Pathologie générale et expérimentale	GIRARD Paul
Clinique médicale C	CROIZAT	Anatomie	LATARJET
Chimie biologique et médicale	ENSELME	Pathologie chirurgicale	PEYCELON
Clinique chirurgicale A	MALLET-GUY	Thérapeutique	GIRARD Marcel
Pharmacie galénique et matière médicale	REVOL	Pathologie médicale	VACHON
Clinique gynécologique	POLLOSSON	Physio-pathologie des voies respiratoires	GALY
Clinique obstétricale	PIGEAUD	Radiologie	PAPILLON
Médecine du travail	BOURRET	Clinique des maladies infectieuses	JEUNE
Clinique médicale A	LEVRAT	Hydrologie thérapeutique, climatologie et écologie sociale	GONIN
Hygiène et action sanitaire et sociale	SOHIER	Bactériologie	MONNET
Clinique médicale infantile et hygiène du premier âge	BERNHEIM	Physiologie et pathologie obstétricales	BANSSILLON
Biologie médicale et pharmacodynamie	JOURDAN	Physiologie B	CHATONNET
Botanique et cryptogamie	NETIEN	Clinique endocrinologique	GUINET
Clinique chirurgicale C	BERTRAND	Clinique de chirurgie orthopédique	TRILLAT
Chimie analytique pharmaceutique	BADINAND	Clinique stomatologique	FREIDEL
Pharmacie chimique et pharmacologie	DREVON	Histologie	X...
Médecine légale et déontologie	ROCHE		

PROFESSEURS A TITRE PERSONNEL

Physique nucléaire appliquée à la médecine	BERGER	Physiologie	CIER J.-François
Bactériologie	BERTOYE	Technologie pharmaceutique	DORCHE

PROFESSEURS SANS CHAIRE

Parasitologie	ROMAN	macologie	CIER André
Pharmacie chimique et phar-		Chimie organique et toxicologie	PERROT

MAITRES DE CONFÉRENCES-AGRÉGÉS

Médecine :			
Anatomie pathologique	FEROLDI	Physique	MORET Robert
Chimie biologique et médicale	CREYSSEL Roger	Anatomie	BOUCHET Alain
Anatomie	DUROUX Emile	Anatomie pathologique	TOMMASI Michel
Thérapeutique	BRETTE René	Hygiène	RIFFAT Georges
Histologie	DUMONT Louis	Pathologie expérimentale	JOUVET Michel
Hygiène	THIVOLLET Jean	Hématologie	FAVRE-GILLY Jean
Parasitologie	GARIN Jean-Paul		
Pharmacie :			
Botanique et cryptogamie	ODDOUX Lucien	Chimie biologique	GRAS Jean
Chimie analytique	MALLEIN René	Physique	PEYRIN Jean-Olivier

AGRÉGÉS EN EXERCICE

Obstétrique	MATHIEU Jacques	Chirurgie générale	SAUBIER Eugène
Orthopédie	MARION Joseph	Dermatologie	COLOMB Daniel
Médecine générale	GUINET Paul	Médecine légale	COLIN Marcel
Médecine générale	PONT Maurice	Médecine du travail	TOLOT François
Médecine générale	VIGNON Georges	Neuro-psychiatrie	GUYOTAT Jean
Médecine générale	REVOL Louis	Neuro-psychiatrie	SCHOTT Bernard
Médecine générale	PLAUCHU Marcel	Obstétrique	DUMONT Martial
Médecine générale	TRAEGER Jules	Ophtalmologie	BONAMOUR Georges
Chirurgie générale	MARION Pierre	Urologie	DURAND Louis
Chirurgie générale	MICHAUD Pierre	Médecine générale	GARDE Alexandre
Chirurgie générale	JAUBERT DE BEAUJEU Michel	Médecine générale	PERRIN André
		Médecine générale	LARBRE François
Chirurgie générale	SAUTOT Jean	Médecine générale	MORNEX René
Chirurgie générale	GUILLEMIN Georges	Médecine générale	NORMAND Jean
Obstétrique	BURTHIAULT René	Chirurgie générale	MARET Gilbert
Oto-Rhino-Laryngologie	GIGNOUX Marcel	Chirurgie générale	DESCOTES Jacques
Pédiatrie	FRANÇOIS René	Electro-radiologie	CHASSARD Jean-Louis
Stomatologie	FREIDEL Charles	Neuro-chirurgie	ALLEGRE Georges
Médecine générale	DEVIC Michel	Ophtalmologie	HUGONNIER René
Médecine générale	DESPIERRES Charles	Orthopédie	FAYSSE Robert
Chirurgie générale	DE MOURGUES G.	Otho-rhino-laryngologie	GAILLARD Jean
Chirurgie générale	FRANCILLON Jacq.	Pneumo-phtisiologie	KALB Jean-Caude

EXAMINATEURS DE LA THÈSE

MM. Pr BERGER, Pr BADINAND, Pr CIER, Pr MORET

A MON PÈRE ET A MA MÈRE

Je leur dois beaucoup.

Que ce travail soit à leurs yeux une preuve de mon amour filial.

A MES FRÈRES

A TOUTE MA FAMILLE

A TOUS CEUX QUI ME SONT CHERS

A TOUS MES AMIS

A NOTRE PRÉSIDENT DE THÈSE

MONSIEUR LE PROFESSEUR M. BERGER

Professeur de physique nucléaire appliquée à la médecine

Il nous a accueilli dans son laboratoire et nous a fait le très grand honneur d'accepter la présidence de cette thèse.

Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de notre respectueuse gratitude.

A nos Juges :

Monsieur le Professeur Agrégé BADINAND

Professeur de chimie analytique pharmaceutique

Monsieur le Professeur Agrégé A. CIER

Professeur de pharmacie chimique et pharmacologie

Nous les remercions de l'honneur qu'ils nous font de juger notre travail.

Monsieur le Professeur Agrégé R. MORET

Maître de conférence agrégé de physique

Il nous a guidé pas à pas dans l'élaboration de ce travail, et a toujours été pour nous un précieux conseiller.

Qu'il veuille bien trouver ici l'expression de notre profonde reconnaissance.

A Monsieur le Médecin-Général BORON

Professeur agrégé du Val-de-Grâce

Directeur de l'Ecole du service de santé militaire
et de l'hôpital d'instruction Desgenettes

A Monsieur le Médecin Lieutenant-Colonel VITTORI

Professeur agrégé du Val-de-Grâce

Chef des services chirurgicaux
de l'hôpital militaire d'instruction Desgenettes

A Monsieur le Médecin Lieutenant-Colonel BOURREL

Chef du service de radiologie
de l'hôpital militaire d'instruction Desgenettes

A Messieurs les Assistants des services de chirurgie
et de radiologie
de l'hopital militaire d'instruction Desgenettes

A tout le personnel du laboratoire de physique de la Faculté de médecine de Lyon.

En particulier à notre ami

H. Gimbergues

Il nous a aidé dans la réalisation du chapitre consacré à l'étude des courbes d'absorption,

qu'il trouve ici l'expression de nos remerciements.

A nos Maîtres de la Faculté de médecine et des Hôpitaux civils et militaires.

INTRODUCTION

Le développement de l'énergie nucléaire, et de la fabrication des radio-éléments artificiels ont permis des applications médicales variées et de plus en plus utilisées. En raison des dangers que présente l'utilisation de tels éléments, les pouvoirs publics ont été obligés de réglementer et de codifier leur utilisation.

Les radio-isotopes sont utilisés en médecine dans deux buts différents :

But thérapeutique :

En irradiation externe, c'est notamment le cas du Co^{60}, du radium, des rayons X.

En irradiation interne :

— Implantation d'Y^{90} dans l'hypophyse.

— Injection péritonéale d'Au^{198}.

— Fixation biologique, liée à la qualité d'isotope : I^{131} se fixant électivement sur la glande thyroïde.

But diagnostic :

L'organisme ne faisant pas la différence entre le corps stable et l'isotope radio-actif, il sera possible d'étudier le métabolisme d'un corps grâce à la possibilité permanente de détection de l'isotope : dans ce cas, le radio-élément est employé comme traceur.

L'utilisation des radio-isotopes est soumise en France à une réglementation spéciale : « en France, le médecin est le seul responsable des radio-isotopes qu'il administre » (Circulaire du 20-7-60 du ministère de la Santé publique).

De ceci il ressort que le médecin devra lui-même contrôler le radio-isotope avant son utilisation ; ce contrôle portera sur :

L'activité :

Une erreur dans l'activité du radio-élément administré exposera le malade à des risques de destruction de tissus ou d'organe dépassant le but recherché.

L'identité :

Une erreur dans l'identité, en dehors de la nullité du point de vue thérapeutique, pourra entraîner des désordres sur un organe différent que celui visé par la thérapeutique.

La pureté :

Si le radio-élément administré renferme une impureté sous forme d'un autre radio-élément, ici aussi le but recherché sera dépassé, ainsi s'associeront les effets des deux radio-éléments, dont un sera néfaste.

Nous nous proposons d'étudier dans ce travail les différentes méthodes de contrôle dont pourra disposer un médecin avant l'utilisation des radio-éléments.

Notre travail se divisera en quatre parties :

Dans la première, nous ferons un très bref rappel des principales propriétés physiques des corps radio-actifs, et de la notion de traceur.

Nous nous limiterons volontairement, aux propriétés permettant l'identification et le contrôle de l'activité de tels corps, et celles faisant connaître les dangers de leur utilisation.

Dans la deuxième, nous envisagerons le contrôle de l'identité du radio-élément reçu. En même temps nous envisagerons le contrôle de la pureté du produit. Nous ne considérerons pas volontairement le contrôle de la pureté chimique, faite à l'aide de la spectrométrie des raies d'émission ; de la pureté radiochimique, faite à l'aide de la chromatographie sur papier et de la pureté bactériologique, ces investigations dépassant le cadre de notre travail.

Nous éliminons immédiatement l'identification du radio-élément par les procédés de la chimie classique. A priori, il est aisé d'identifier de l'iode 131 (qui a les mêmes propriétés que l'iode stable), à l'aide de son réactif spécifique, l'empois d'amidon. Cette méthode ne peut être appliquée ici, en effet, un calcul simple nous montre qu'il suffit de 0,008 mg d'iode 131 pour obtenir une activité de 1 Curie, qui est déjà très importante pour l'usage médical. Une telle propriété nécessite l'adjonction d'entraîneur dans la prépara-

tion. L'entraîneur étant constitué par de l'iode stable, donc une identification chimique nous donnerait tout simplement l'identification de l'entraîneur.

Dans la troisième, nous envisagerons le contrôle de l'activité du radio-élément. Ce contrôle sera pratiqué à deux stades :

— Contrôle de l'activité totale du produit reçu à la réception.

— Contrôle de l'activité de chaque fraction préparées par l'utilisateur avant leur distribution.

Cette manière de faire entraîne des problèmes de stockage ; nous possédons au laboratoire de physique un coffre blindé divisé en compartiments séparés, après leur contrôle chaque échantillon y est stocké avec mention sur le compartiment correspondant de son identité et de son activité, ainsi les causes d'erreurs dues aux manipulations du laboratoire sont évitées.

Dans la quatrième nous donnerons à titre d'exemples, les protocoles détaillés de contrôle d'isotopes fréquemment utilisés, et présentant des rayonnements différents (^{32}P : émetteur β pur — ^{131}I émetteur $\beta \pm \gamma$ — et un cas particulier : ^{90}Y et ^{198}Au).

Pour le contrôle des radio-éléments, nous utiliserons ses caractéristiques radio-actives, que nous rappellerons dans la première partie de notre travail.

Les méthodes que nous indiquons ont été choisies en raison de leur simplicité ; elles ne sauraient être considérées comme seules valables.

Leur domaine d'application correspond principalement au cas où un seul radio-élément est présent dans l'échantillon à contrôler.

CHAPITRE I

LES ISOTOPES RADIO-ACTIFS

RAPPEL DE NOTIONS GÉNÉRALES

Nous pensons que les utilisateurs d'isotopes radio-actifs en médecine connaissent suffisamment bien les propriétés de ces corps pour qu'il soit inutile de rappeler un grand nombre de notions, mais pour donner plus de clarté à notre travail, nous croyons nécessaire d'introduire celles auxquelles nous serons amenés à nous référer.

ISOTOPES — ISOTOPES RADIO-ACTIFS

L'atome est constitué d'un noyau entouré d'un cortège électronique, le noyau comprenant Z protons, et N neutrons.

Z et N caractérisent l'atome.

Z nombre de protons, représente le numéro atomique, c'est-à-dire la place occupée par l'atome dans la classification périodique de MENDELEIEFF.

$N + Z = A$, représente le nombre de nucléons contenus dans le noyau, on l'appelle : nombre de masse.

Il existe des noyaux de même Z, mais de A différents, ces atomes n'ont pas le même nombre de neutrons.

Le cortège électronique est constitué par Z électrons ; il y a autant d'électrons (charges négatives) autour du noyau, que de protons (charges positives) dans le noyau. L'atome a ainsi une charge globale nulle.

Les éléments de même Z mais de différent A ont donc même cortège électronique.

Les propriétés chimiques d'un atome étant liées à son cortège électronique, des éléments de même Z ont mêmes propriétés chimiques et ils occupent la même case dans la classification périodique de MENDELEIEFF, c'est pour ceci qu'ils sont appelés « ISOTOPES ».

Si dans le noyau, il y a trop ou trop peu de neutrons par rapport au nombre de protons, le noyau est instable et se désintègre spontanément : on dit alors qu'il est radio-actif.

Exemple :

La case 53 de la classification périodique est occupée par l'iode qui se présente sous plusieurs isotopes :

$$^{119\text{ à }139}_{53}\text{I}$$

Parmi eux, seul $^{127}_{53}$I, naturel, est stable.

Le corps radio-actif émet continuellement et spontanément un rayonnement qui est de l'un des types suivants :

α, β, $\alpha + \gamma$, $\beta + \gamma$.

En médecine, on exploite :

Soit le caractère radio-actif seul :

Le corps est utilisé pour son rayonnement. C'est le principe de la cobaltothérapie, de l'irradiation interne par $^{198}_{79}$Au. colloïdal, par exemple.

Soit le caractère radio-actif et le caractère identité des propriétés chimiques :

Le corps radio-actif est alors appelé « TRACEUR ». Ainsi l'organisme ne peut faire la différence entre l'iode stable ^{127}I et son isotope radio-actif ^{131}I, qui par ses propriétés radio-actives, permettra de suivre le métabolisme de l'iode stable pour étudier à titre diagnostic la fonction thyroïdienne. Il pourra être utilisé aussi dans un but thérapeutique, l'organe malade fixant lui-même l'isotope : traitement de la maladie de Basedow avec ^{131}I.

LOI DE DÉCROISSANCE RADIO-ACTIVE

Constante radio-active - Période d'un radio-élément.

Suivons l'évolution des atomes d'un corps radio-actif présent dans une masse initiale de ce corps. La vitesse à laquelle un élément se désintègre est indépendante, sauf pour de très rares radio-éléments des conditions physiques ou chimiques dans lesquelles il se trouve placé.

Expérimentalement, on a établi que le nombre de désintégrations survenant par unité de temps au sein d'une source radio-active est proportionnel au nombre des atomes présents, c'est-à-dire que le pourcentage d'atomes désintégrés par unité de temps est une constante. Ceci entraîne que l'activité A du radio-élément à une date t, est liée à l'activité initiale A_0 par la relation :

$$A = A_0 \quad e^{-\lambda t}$$

dans laquelle λ, appelée constante radio-active, est égale à la fraction des atomes présents qui se désintègrent par unité de temps.

Par exemple, pour l'iode 131 : $\lambda = \frac{1}{10^{-6}}$ quand on prend la seconde pour unité de temps.

La vitesse instantanée de désintégration est donc de 1/millionième des atomes présents par seconde.

Le temps T nécessaire pour que la moitié des atomes initialement présents se soient désintégrés est appelé la période.

Il existe entre T et λ la relation :

$$\lambda \; T = 0{,}693$$

Ainsi dans l'exemple précédent :

$$T = \frac{0{,}693}{1/10^{-6}} = 0{,}693 \times 10^{6} = 693.000 \text{ secondes.}$$

693.000 sec. = 8 jours.

La période de l'iode 131 est environ 8 jours.

λ, T, varient d'un radio-élément à un autre, mais sont toujours les mêmes pour un radio-élément donné, qu'ils caractérisent.

Les périodes des radio-éléments naturels et artificiels connus sont comprises entre une fraction de seconde et des millions d'années.

Il n'existe pas deux corps radio-actifs présentant la même période de décroissance, c'est pour ceci que la période est une propriété caractéristique.

Activité.

L'activité d'une source est représentée par le nombre de désintégrations, dont elle est le siège par unité de temps et s'exprime en Curie.

L'activité d'une source est de un Curie quand elle est le siège de $3{,}7 \times 10^{10}$ désintégrations par seconde.

Soit une source d'activité A, siège de n désintégrations par seconde ; calculons le nombre N d'atomes dont elle est constituée :

$$A = \frac{n}{3{,}7 \times 10^{10}} = \frac{N \times \lambda}{3{,}7 \times 10^{10}} =$$

$$\frac{N}{T} \times \frac{0{,}693}{3{,}7 \times 10^{10}} = 0{,}188 \times 10^{-10} \frac{N}{T}.$$

Pour obtenir une actiivité donnée, le nombre d'atomes est inversement proportionnel à la période.

Le calcul effectué pour ^{131}I montre qu'il faut $3{,}7 \times 10^{16}$ atomes pour obtenir une activité de 1 Curie, soit en poids environ 0,008 mg.

Donc, nous voyons que l'on peut obtenir des activités élevées (1 Curie) avec une très petite quantité de radio-élément. Le Curie représente en pratique médicale courante une activité très grande et on utilise plus couramment ses sous-multiples :

Millicurie (10^{-3} Curie-mC)
Microcurie (10^{-6} Curie-μC)

Schéma de désintégration - Spectre énergétique.

Suivons dans le temps la constitution d'un atome, d'un corps radio-actif naturel ou artificiel. L'émission de particule va modifier la constitution de son noyau, selon les processus suivants :

Emission α :

$$\begin{matrix} A \\ Z \end{matrix} X \longrightarrow \begin{matrix} A-4 \\ Z-2 \end{matrix} Y + \begin{matrix} 4 \\ 2 \end{matrix} \alpha \ (+ \gamma).$$

Emission β positif :

$$\begin{matrix} A \\ Z \end{matrix} \quad X \longrightarrow \quad \begin{matrix} A \\ Z-1 \end{matrix} \quad \gamma + \quad \begin{matrix} 0 \\ +1 \end{matrix} \quad \beta \ (+\gamma).$$

Emission β négatif :

$$\begin{matrix} A \\ Z \end{matrix} \quad X \longrightarrow \quad \begin{matrix} A \\ Z+1 \end{matrix} \quad \gamma + \quad \begin{matrix} 0 \\ -1 \end{matrix} \quad \beta \ (+\gamma).$$

L'émission γ n'étant pas toujours réalisée.

Exemples :

Emission α :

$$\begin{matrix} 210 \\ 84 \end{matrix} \quad Po \longrightarrow \quad \begin{matrix} 206 \\ 82 \end{matrix} \quad Pb + \quad \begin{matrix} 4 \\ 2 \end{matrix} \quad H\ c.$$

Emission β négatif :

$$\begin{matrix} 32 \\ 15 \end{matrix} \quad P \longrightarrow \quad \begin{matrix} 32 \\ 16 \end{matrix} \quad S + \quad \begin{matrix} 0 \\ -1 \end{matrix} \quad \beta.$$

$$\begin{matrix} 86 \\ 37 \end{matrix} \quad Rb \longrightarrow \quad \begin{matrix} 86 \\ 38 \end{matrix} \quad Sr + \quad \begin{matrix} 0 \\ -1 \end{matrix} \quad \beta + \gamma.$$

Emission β positif :

$$\begin{matrix} 22 \\ 11 \end{matrix} \quad Na \longrightarrow \quad \begin{matrix} 22 \\ 10 \end{matrix} \quad Ne + \quad \begin{matrix} 0 \\ +1 \end{matrix} \quad \beta + \gamma.$$

SPECTRE ÉNERGÉTIQUE

Spectre β.

Lors de leur émission par le corps radio-actif, les particules β n'ont pas toutes la même vitesse, donc n'ont pas toutes la même énergie.

La répartition des β selon leur énergie, constitue le spectre qui se révèle être continu. Une telle émission se caractérise par son énergie maximum : Em (fig. 1). Mais un radio-élément peut émettre plusieurs groupes de β, chacun d'eux ayant encore un spectre continu caractérisé par son énergie maximum (fig. 2). Ces différents groupes de β sont émis selon un pourcentage fixe. L'importance

du groupe de β sera donc fonction de ce pourcentage. Nous appelons mono-énergétique un rayonnement β constitué d'un seul groupe, polyénergétiques les autres. Ainsi, l'iode 131, qui émet 4 groupes de β, est polyénergétique.

β_1 = 0,815 Mev (0,7 %)
β_2 = 0,608 Mev (87,2 %)
β_3 = 0,335 Mev (9,3 %)
β_4 = 0,250 Mev (2,8 %)

L'émission α ou β peut laisser le noyau créé dans un état excité, c'est-à-dire que l'on obtient un noyau qui a même A et même Z que le noyau définitif, mais dans un état d'énergie différent. C'est un isomère nucléaire du noyau définitif ; il a en général une vie très brève, et le noyau revient à l'état fondamental en émettant un photon.

Schémas de désintégration.

Reprenons les exemples précédents, essayons de les représenter par des schémas de désintégration.

Emission α (fig. 3).

Le polonium émet deux α. L'émission d'α fait diminuer A de 4 unités et Z de 2 unités. On tombe alors sur la case 84 — 2 = 82 qui est celle du plomb dans la classification périodique. Les lignes verticales en pointillé limitent les cases. Les traits horizontaux présentent les niveaux d'énergie de l'atome initial et de l'atome final ; ce dernier étant pris conventionnellement égal à zéro. Les rayonnements α sont schématisés par des flèches inclinées vers la gauche, car le Z diminuant de 2, nous « retournons en arrière » dans la classification périodique.

Le polonium émet deux α ; α_1 laisse le plomb créé dans l'état fondamental, et l'autre α_2 donne un noyau excité (isomère nucléaire), qui par émission d'un γ emportant une énergie $\Delta\omega$, ramène le noyau excité à l'état fondamental.

Employant la même schématisation, voyons les désintégrations des émetteurs β positifs et β négatifs.

Emetteur β négatif.

Dans ce cas-là, nous « gagnons » une case dans la classification

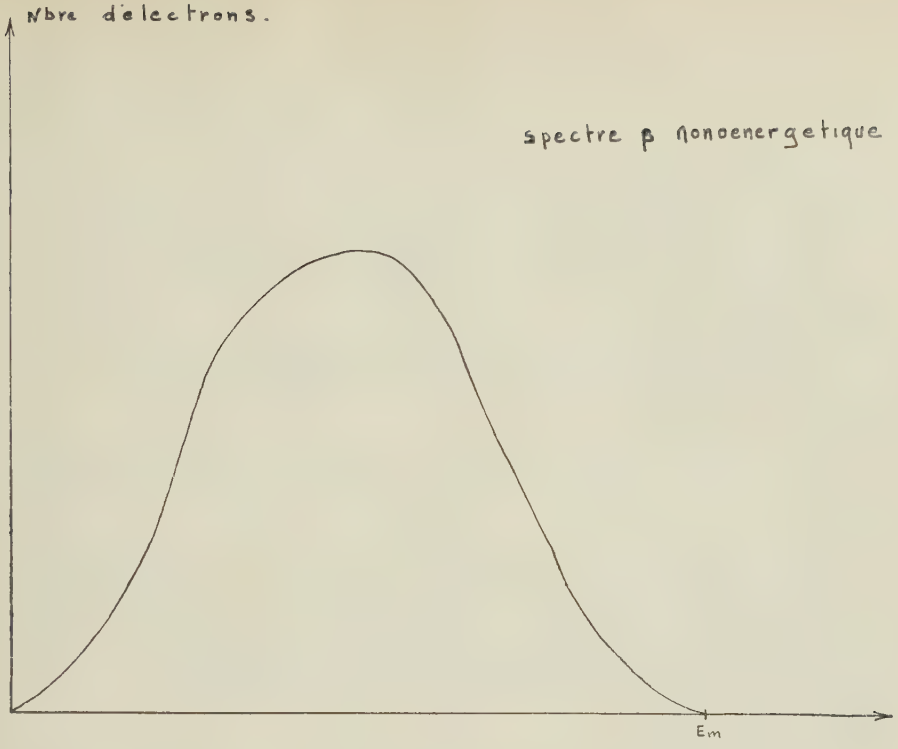


FIGURE I

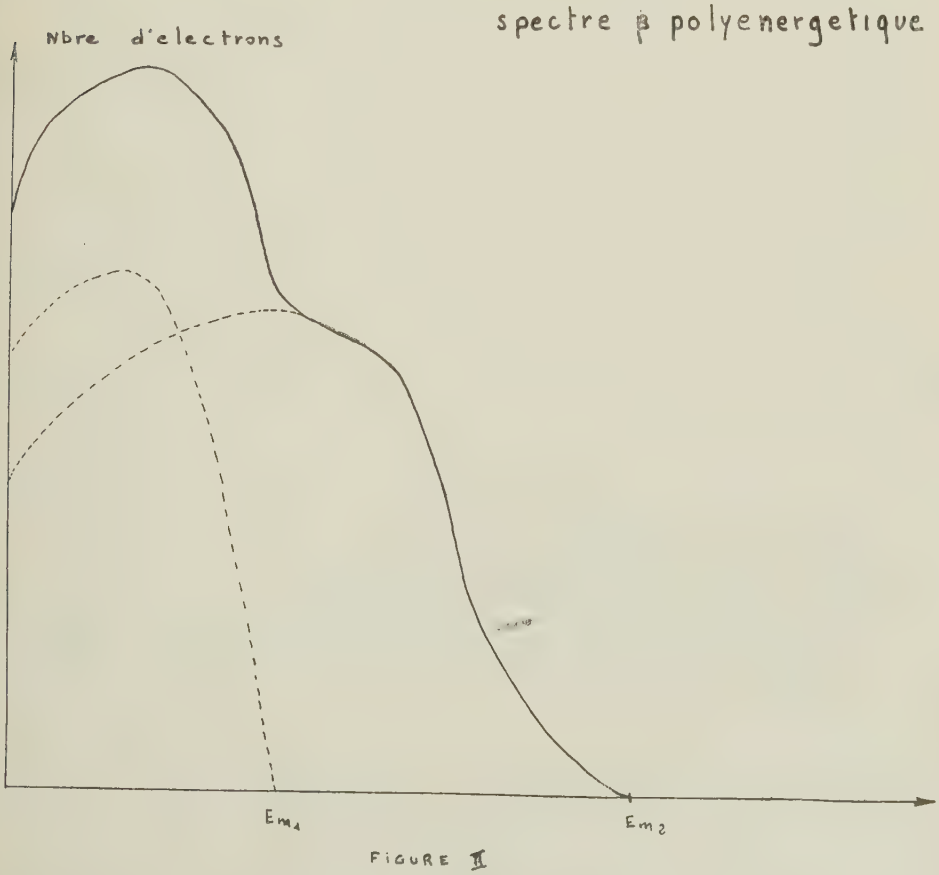


FIGURE II

périodique (Z augmente d'une unité), donc nous représenterons l'émission β^- par une flèche inclinée vers la droite.

Le phosphore 32 émet un β^- et donne du soufre 32, sans émission de γ (fig. 4).

Le rubidium 86 émet deux β^- dont l'un est suivi d'une émission γ pour obtenir du strontium 86 à l'état fondamental (fig. 5).

Emetteur β positif.

Ici Z perd une unité, nous nous retrouvons dans la case précédente.

Le sodium 22 émet un β^+, suivi d'un γ pour donner du néon 22.

Nous voyons donc à partir de ces schémas, que par désintégration (émission α ou β), un noyau radio-actif peut, soit donner un noyau dans son état fondamental, soit donner un isomère à l'état excité, qui émettra un rayonnement gamma (fig. 6).

Spectre gamma.

Le rayonnement gamma est directement lié à l'émission α ou β qui lui a donné naissance. Son énergie sera égale à la différence existant entre la différence d'énergie de l'atome formateur et de l'atome final, et l'énergie de la particule émise. S'il s'agit d'un rayonnement β, l'énergie correspondante est l'énergie maximale de son spectre.

Si un corps émet plusieurs groupes de béta, il pourra y avoir plusieurs gammas d'émis et le spectre ainsi formé sera une succession de raies.

Nous avons vu que les β émis par un noyau l'étaient dans des proportions définies, il en sera de même pour les gammas.

Exemple :

Nous allons à l'aide des schémas de désintégration utilisés précédemment, essayer d'étudier le schéma de désintégration de l'iode 131 (fig. 7).

L'iode 131 émet 4 groupes de béta (voir plus haut), d'énergie différente et en proportion variable. A ces 4 β^- correspondent 4 groupes de γ d'énergie mentionnée sur le schéma, à savoir : 0,722 Mev, 0,637 Mev, 0,364 Mev, 0,163 Mev.

Ici le phénomène se complique. L'isomère nucléaire du xénon correspondant au niveau d'énergie 0,364 Mev, peut revenir à son

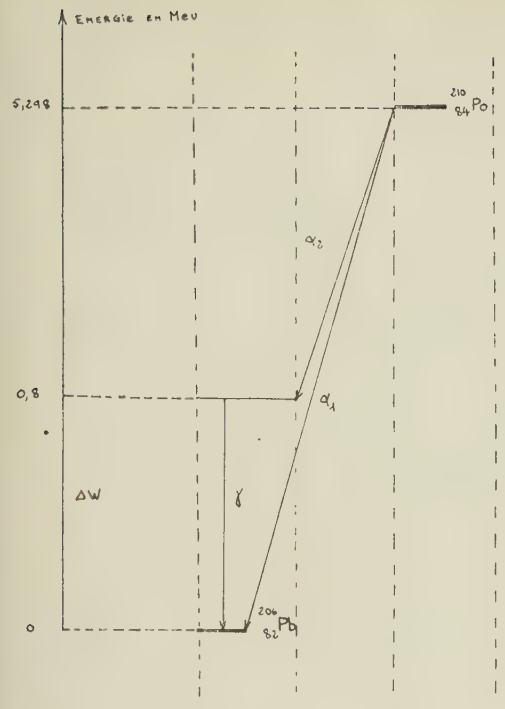


FIGURE 3

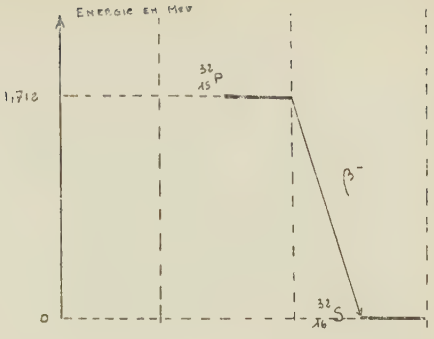


FIGURE 4

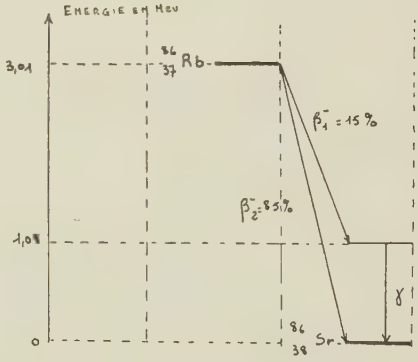


FIGURE 5

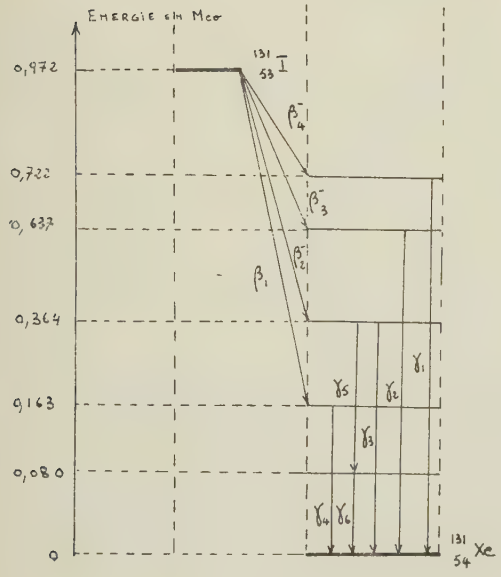


FIGURE 7

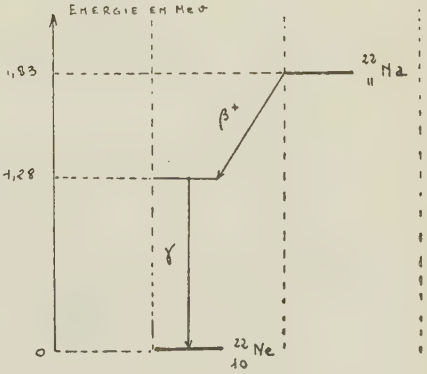


FIGURE 6

. schémas de désintégration.

état stable soit en émettant un γ de 0,364 Mev, soit en passant par un niveau intermédiaire de 0,080 Mev. Il y a donc émission successive d'un γ de 0,284 Mev, suivi d'un γ de 0,080 Mev.

En définitive, l'iode se désintègre de la façon suivante :

β_1 = 0,815 Mev (0,7 %) + γ_4 = 0,163 Mev (0,5 %)
β_2 = 0,608 Mev (87,2 %) + γ_3 = 0,364 Mev (80 %)
+ γ_5 = 0,284 Mev (5,3 %)
+ γ_6 = 0,080 Mev (2,2 %)
β_3 = 0,335 Mev (9,5 %) + γ_2 = 0,637 Mev (9 %)
β_4 = 0,250 Mev (2,8 %) + γ_1 = 0,722 Mev (3 %)

De ces résultats, nous déduisons le spectre gamma théorique de l'iode 121 (fig. 8).

CARACTÉRISTIQUES D'UN ÉLÉMENT RADIO-ACTIF

Nous venons de définir dans ce qui précède, pour un radio-élément donné :

— sa période,
— la nature de son rayonnement,
— son spectre énergétique.

Nous possédons ici trois caractères distinctifs d'un radio-élément.

La période est fixe pour un radio-élément donné, il n'existe pas deux radio-éléments ayant des périodes identiques. Un radio-élément peut émettre un rayonnement : α, β, $\alpha + \gamma$, $\beta + \gamma$, ce rayonnement sera caractérisé par son énergie et sa proportion d'abondance dans le cas où il y a plusieurs rayonnements émis.

Ces trois propriétés nous montrent qu'elles caractérisent amplement un radio-élément.

A priori, si on est en mesure d'analyser ces trois caractéristiques, on pourra toujours identifier un radio-élément.

PRÉPARATION DES RADIO-ÉLÉMENTS ARTIFICIELS

Les radio-éléments artificiels sont préparés par réaction nucléaire. Les différents types de réactions nucléaires de préparation sont obtenus dans des piles.

La technique consiste à bombarder le noyau par des particules.

Abondance
Spectre γ Théorique
de 131 I
100
10
1
0,1
0
0,08
0,163
0,284
0,364
0,637
0,722
energie - Mev

Figure: 8

Le plus souvent, la particule employée est le neutron en raison de sa charge nulle.

Pendant un temps très court, le neutron forme avec le noyau-cible un noyau composé qui peut se détruire de différentes manières, avec émission de rayonnements (γ) ou de particules (α, protons) et la formation éventuelle d'un radio-élément.

Différents types de réactions obtenues :

1° *Réaction* (n, γ) :

Dans cette réaction, le projectile est le neutron, la formation du corps se fait avec émission d'un photon.

Exemple :

$$\overset{23}{\underset{11}{Na}} + \overset{1}{\underset{0}{n}} \longrightarrow \overset{24}{\underset{11}{Ne}} + \gamma$$

2° *Réaction* (n, β) :

Projectile neutron, émission d'un proton.

$$\overset{37}{\underset{15}{Cl}} + \overset{1}{\underset{0}{n}} \longrightarrow \overset{35}{\underset{16}{S}} + \overset{1}{\underset{1}{P}}$$

3° *Réaction* (n, α) :

Projectile neutron, émission d'une particule.

$$\overset{27}{\underset{13}{Al}} + \overset{1}{\underset{0}{n}} \longrightarrow \overset{24}{\underset{11}{Na}} + \overset{4}{\underset{2}{\alpha}}$$

4° *Réaction* (n, γ) $\longrightarrow$ β :

Dans ce type de réaction, on retombe sur le même cas que I), mais le corps formé ici est très instable, il y a alors émission rapide d'un β^- donnant ainsi un deuxième corps.

$$\overset{198}{\underset{78}{Pt}} + \overset{1}{\underset{0}{n}} \longrightarrow \overset{199}{\underset{78}{Pt}} + \gamma \xrightarrow[30\ min.]{\beta^-} \overset{199}{\underset{79}{Au}}$$

C'est le type de réaction employé pour la préparation de l'iode 131.

$$\overset{130}{\underset{52}{Te}} + \overset{1}{\underset{0}{n}} \longrightarrow \overset{131}{\underset{52}{Te}} + \gamma \xrightarrow[30\ h]{\beta^-} \overset{131}{\underset{53}{I}}.$$

5° *Fission :*

Certains radio-éléments, par capture de neutrons subissent la fission, et se brisent en plusieurs noyaux plus simples radio-actifs dont les Z sont compris entre 30 et 62.

Un tel type de réaction s'écrit par exemple :

$$U(n,f) \longrightarrow 137Cs$$

Projectile neutron, f : fission.

Il n'y a pas de radio-éléments utilisés en médecine obtenus par fission.

Lorsqu'un élément est irradié, c'est-à-dire soumis à l'action des neutrons d'une pile, la radio-activité qui se forme par gramme de substance croît avec le temps et peut être calculée d'après l'équation :

$$A = \frac{0,6}{3,7 \times 10^{10}} \cdot \frac{\Phi \sigma}{M} 1 \left(e - 0,693 \frac{t}{T} \right)$$

où A : activité spécifique en Curies par grammes.
Φ : flux de neutrons en neutrons/cm²/secondes.
M : masse atomique de l'élément irradié.
σ : section efficace en barns (1 barn = 10^{-24}/cm²).
t : durée de l'irradiation } exprimés dans les mêmes
T : période du radio-élément } unités.

On voit donc que l'activité va se trouver limitée par la période.

Pour une certaine valeur de t, on obtient une saturation. La saturation est généralement atteinte au bout d'un temps égal à 7 périodes.

PROPRIÉTÉS DES RAYONNEMENTS RADIO-ACTIFS

Propriétés ionisantes.

Dans l'interaction des rayonnements avec la matière, leur effet principal est l'ionisation d'un certain nombre d'atomes et la quasi-totalité de leur énergie y est consacrée.

Au même titre qu'une particule ionise les atomes d'un gaz

qu'elle traverse, elle pourra avoir la même action sur les structures chimiques des édifices biologiques complexes constituant des matériaux cellulaires.

Les molécules subiront ainsi de profondes modifications, ces modifications sont minimes, et il existe une très grande disproportion entre l'effet chimique et l'effet biologique qui en résulte.

En effet, ces actions ionisantes ont pour conséquences de donner aux rayonnements radio-actifs des propriétés biologiques.

Propriétés biologiques.

Les propriétés biologiques des radiations ionisantes se manifestent sous différentes formes :

Modifications chimiques :

Par la destruction de grosses molécules protéiques, apparition de substances toxiques ou destruction de substances vitales pour l'organisme.

Mutations :

Par action sur les gènes cellulaires, la radiation ionisante entraîne de profondes modifications. Ces mutations sont surtout sensibles lorsqu'elles interviennent au niveau d'être unicellulaire, ou au niveau de cellules germinales.

Retard de la division :

Les radiations ionisantes inhibent la mitose. Cette inhibition croît avec la dose de rayonnement appliqué.

Mort cellulaire :

En utilisant une dose de radiation suffisamment importante, il est possible de tuer la cellule.

Toutes ces propriétés biologiques sont surtout nettes au niveau de l'être unicellulaire.

Chez l'être pluricellulaire organisé en tissus, tous ces phénomènes se retrouvent, avec des sensibilités différentes.

Ainsi dans l'organisme, des tissus seront plus sensibles aux radiations que d'autres. Les tissus en constante régénération (sang), sont plus sensibles qu'un tissu ne se régénérant pas (système nerveux).

Tout ceci nous fait entrevoir les dangers que peuvent présenter :

Une erreur dans la dose :

Si la dose administrée aux malades est trop élevée, on pourra atteindre la dose léthale, c'est-à-dire que dans le cas d'un but diagnostic, nous pourrons avoir une destruction cellulaire non recherchée.

Une erreur dans la nature :

Les isotopes radio-actifs sont employés en médecine pour leur propriétés ionisantes et aussi pour le fait que l'organisme ne fait pas de distinction entre deux isotopes (ils ont mêmes propriétés chimiques).

Ainsi l'administration d'iode entraînera une fixation par la glande thyroïde, alors que le phosphore ira se fixer sur la moelle osseuse et le strontium sur les os.

Donc, en cas d'erreur dans la nature, nous voyons les effets néfastes que cela peut entraîner. En dehors de la nullité du point de vue thérapeutique, nous obtiendrons des lésions sur un organe sain.

CONCLUSION

Nous avons brièvement rappelé dans ce chapitre quelques propriétés des corps radio-actifs.

Nous avons surtout insisté sur les propriétés qui permettront de caractériser un radio-élément :

— Nature du rayonnement.
— Energie du rayonnement.
— Période.

Nous allons donc utiliser ces différentes propriétés dans les chapitres suivants.

Pour identifier un radio-élément, nous nous servirons de sa période, et de l'énergie de son rayonnement.

Pour vérifier son activité, nous utiliserons ses propriétés de désintégration.

CHAPITRE II

CONTROLE DE LA NATURE ET DE LA PURETÉ D'UN RADIO-ÉLÉMENT

Nous avons à notre disposition trois méthodes pour contrôler la nature d'un radio-élément.

1° *Controle de la période :*

Méthode simple, qui peut être très précise, mais demande une certaine perte de temps.

2° *Controle de l'énergie du rayonnement :*

Méthode beaucoup plus rapide que la précédente, très précise. Elle étudie l'énergie du rayonnement β, donc est applicable pour tous les radio-éléments utilisés en médecine.

3° *Spectrométrie :*

C'est la méthode la plus rapide, la plus précise. Elle ne sera utilisée que pour les émetteurs γ.

I. CONTROLE DE LA PÉRIODE D'UN RADIO-ÉLÉMENT

Principe.

La période d'un radio-élément se détermine en faisant deux mesures de l'activité à des temps séparés, et en étudiant cette décroissance.

On mesure A_1 au temps t_1
A_2 au temps t_2

Nous pouvons écrire :

$$A_2 = A_1 \; e^{-\lambda (t_2 - t_1)}$$

D'où $$\frac{A_1}{A_2} = e^{\lambda (t_2 - t_1)}$$

On en déduit

$$\log \frac{A_1}{A_2} = \lambda (t_2 - t_1) \text{ d'où } \lambda = \frac{1}{t_2 - t_1} \cdot \log \frac{A_1}{A_2}$$

Sachant que $\lambda T = 0{,}693$.

Nous pouvons déterminer la période

$$T = (t_2 - t_1) \; 0{,}693 \; \frac{1}{\log \frac{A_1}{A_2}}$$

ou

$$T = (t_2 - t_1) \; 0{,}693 \log \frac{A_2}{A_1}$$

Expérimentalement nous pouvons déterminer A_1 et A_2, avec une précision suffisante.

Si les mesures sont faites de telle sorte que :

$(t_2 - t_1)$ est connue à 1 % tout en étant de l'ordre de $\frac{T}{4}$

$\frac{A_2}{A_1}$ est connu à 1 %.

alors $\frac{T}{4}$ est connu à 4 % près.

Ceci montre la difficulté qu'il y a, à calculer T à partir des mesures effectuées dans un intervalle de temps trop bref relativement à la période.

Un temps de $\frac{T}{4}$ correspond à une perte d'activité de l'ordre de 84 %, donc appréciable par les appareils de mesure.

Conséquences :

Le planning de travail du laboratoire, prévoit l'utilisation des radio-éléments reçus dans la semaine qui suit cette réception, en raison des problèmes de stockage, et les pertes éventuelles de produit dues à une trop longue attente.

Nous sommes donc limités par le temps. La méthode précédente ne devient applicable que pour les radio-éléments à vie brève.

Courtes périodes :

Nous classerons dans les éléments à courtes périodes les éléments dont celle-ci ne dépassera pas 4 jours :

^{24}Na : 14,8 h — ^{198}Au : 2,7 j — $^{90}\gamma$: 2,9 j.

Pour de tels radio-éléments ($t_2 - t_1$) sera $\leqslant$ 1 jour.

Pour éviter une perte de temps même minime $\leqslant$ 1 jour, nous pouvons utiliser les délais de transport. En effet, la durée du transport entre Saclay et Lyon est de l'ordre de 1 jour ; si l'activité de l'échantillon nous est donnée au départ de Saclay, lors de la réception 24 heures se sont écoulées, nous pouvons connaître immédiatement A_2. Ceci oblige les fournisseurs à nous communiquer A_1 et t_1 avec une très grande précision. Ainsi pour un élément de courte période (T $\leqslant$ 4 jours), nous pourrons vérifier sa période dès sa réception.

Longues périodes : ^{131}I : 8 j. — ^{32}P : 14 j.

Pour les éléments à longues périodes, les délais de transport ne sont plus suffisants, et il est nécessaire d'attendre un certain temps après réception du produit. Ce laps de temps oblige l'utilisateur à stocker de grosses activités, donc est à éviter.

En pratique :

Le problème que nous avons à résoudre au laboratoire est en fait un peu différent, en ce sens que nous avons à vérifier une identité. Nous savons « a priori » le radio-élément présent dans l'échantillon, nous connaissons son activité au temps t ; ces données nous étant communiquées par Saclay. Nous pouvons déterminer par le

calcul l'activité de l'échantillon au temps t, temps auquel nous pratiquons la mesure, en tenant compte de la décroissance du produit présumé. Si l'activité trouvée expérimentalement est identique à celle déterminée par le calcul, il existe de fortes présomptions pour que le radio-élément reçu soit bien celui indiqué par le fournisseur.

Il est bien entendu que même dans ce cas, il faudra un délai minimum de 1/4 de période entre t et t' pour que la mesure soit considérée comme valable.

Une autre méthode de contrôle de la décroissance de l'activité de l'échantillon pourra être utilisée : c'est la méthode de mesure continue.

Des appareils permettent de pratiquer des comptages à temps prédéterminés. L'appareil mesure dans ce cas-là le taux de radioactivité émis par une source tous les 1/4 d'heure par exemple, pendant une temps au moins égal à 1/4 de période. Tous les chiffres obtenus sont affichés sur le compteur. Ils permettront le calcul du taux de comptage N par minute à des intervalles de temps séparés

A partir de ces résultats, la courbe N en fonction du temps pourra être tracée. Cette courbe nous donnera de précieux renseignements :

— Si l'isotope est pur, la courbe obtenue sur papier semi-logarithmique sera une droite, la pente de cette droite nous donnera la valeur de la période du radio-élément considéré.

— Si la courbe obtenue n'est pas une droite, nous avons une forte présomption de la présence d'impureté dans l'échantillon. Impureté sous forme d'un autre radio-élément.

Cette méthode est beaucoup moins précise pour la détermination de la période que la précédente, mais présente l'avantage de fournir en même temps un contrôle valable de la pureté de l'échantillon.

EN CONCLUSION

Le contrôle de l'identité d'un échantillon par la méthode de la mesure de sa période de décroissance radio-active est très simple, néanmoins elle expose à de grosses erreurs, d'autre part, cette méthode demande trop de temps en particulier pour les radio-éléments à longues périodes.

Pour le contrôle de la pureté, il en sera de même, la méthode est très simple mais très longue.

Il est heureusement à notre disposition des méthodes encore plus précises et beaucoup plus rapides.

II. VÉRIFICATION DE LA NATURE ET DE L'ÉNERGIE DU RAYONNEMENT

Nous avons vu dans la première partie de ce travail, qu'un corps radio-actif pouvait se caractériser par la nature et le spectre de son rayonnement.

Nous avons à notre disposition deux méthodes pour mettre cette remarque en application :

— La première consiste à étudier l'absorption des rayonnements par un choix judicieux d'écrans ;

— La deuxième est l'analyse spectrométrique du rayonnement.

Remarque :

Il n'y a pas d'émetteur γ pur, sauf pour les émetteurs γ par capture électronique (Cr 51, par ex.), d'autre part en médecine on n'utilise pas les émetteurs α, on aura donc à étudier que les émetteurs β et $\beta + \gamma$.

Suivant le détecteur utilisé on mesure :

— soit les β,

— soit les γ (ou la radiation de freinage).

Ces deux mesures sont possibles à l'aide d'un compteur de Geiger-Muller, appareil que tout laboratoire utilisant des radio-isotopes doit posséder.

A) Etude de l'absorption du rayonnement.

Si une source émettrice β infiniment mince est recouverte d'écrans de densités superficielles croissantes, la courbe d'absorption, c'est-à-dire la courbe représentative de l'activité mesurée β en fonction de la densité superficielle permet de déterminer l'énergie du rayonnement β. Nous allons rappeler ci-dessous en quoi cette absorption est caractéristique de l'énergie et comment elle peut être utilisée au contrôle de la nature et de la pureté d'un radio-élément émetteur β.

Montage expérimental :

Le montage comprendra un compteur de Geiger-Muller en regard duquel sera placé un échantillon du radio-élément dont on veut déterminer l'énergie du rayonnement. L'échantillon sera placé sur un support fixe, dont la position par rapport à l'appareil sera bien définie et invariable.

L'échantillon sera étalé en couches très minces afin d'éviter les erreurs dues à l'auto-absorption. Il sera ainsi pratiqué différentes mesures en interposant entre le compteur et l'échantillon des écrans de densité superficielle croissante.

Montage du laboratoire :

Nous allons décrire ici le montage utilisé au laboratoire (fig 9).

Il a été utilisé un compteur de Geiger-Muller, qui est un compteur cloche à courant gazeux et à fenêtre circulaire mince.

Ce compteur est fixé sur un bloc de duralumin creusé en une gouttière pouvant recevoir la source, de telle manière que celle-ci se trouve placée à 4 mm de la fenêtre.

Les sources sont constituées par quelques gouttes du radio-élément à étudier, que l'on étale sur un disque de nylon.

Après séchage, l'on possède ainsi une source mince, homogène, et d'activité comprise entre 5 000 et 10 000 désintégrations par minute. Les mesures étant relatives, il n'est pas nécessaire de connaître cette activité avec une très grande précision.

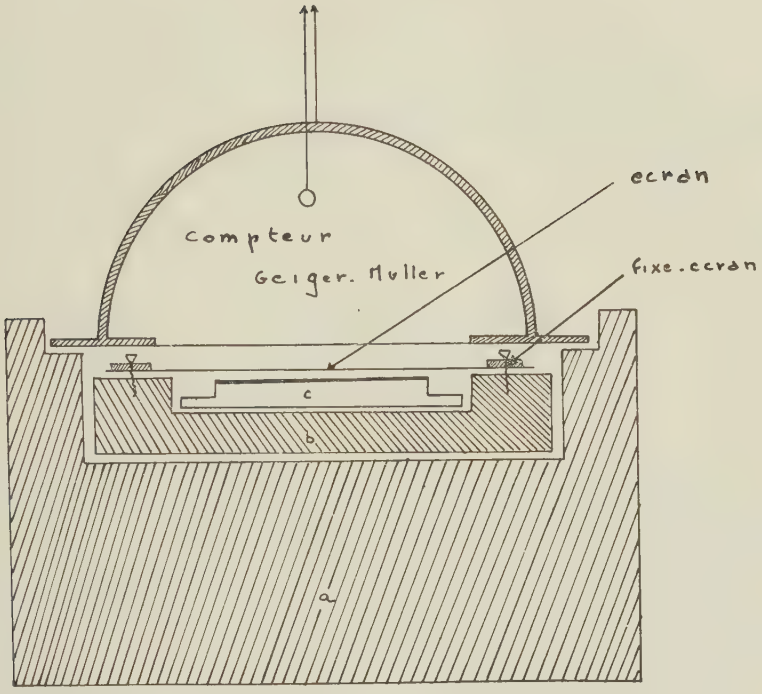
Les écrans utilisés ici, sont des disques à base d'acétate de cellulose, livrables sous différentes épaisseurs entre 0,02 mm et 2,5 mm, épaisseurs auxquelles correspondent des densités superficielles comprises entre 3,5 et 330 mg/cm^2.

Loi d'absorption du rayonnement β :

La source est placée dans son support et comptée dans ces conditions, puis on la recouvre par évaporation d'un film cellulosique très mince dont on détermine la densité superficielle par pesée, afin de protéger la source.

Puis on fait une série de mesures avec les écrans d'épaisseur croissante. Avec les valeurs obtenues nous construisons la courbe représentative de la fonction :

Activité mesurée = f (densité superficielle ρ de l'écran).



a : bloc duralumin.

b : support de plexiglas

c : coupelle recouverte de la source

Figure 9

En coordonnées semi-logarithmiques, et jusqu'à des densités superficielles assez élevées, cette courbe est une droite pour un rayonnement β mono-énergétique.

L'activité n s'exprime donc en fonction de la densité superficielle ρ de l'écran par la relation :

$$n = n_0 \, e^{-\mu\rho}$$

où n_0 : activité mesurée sans écran.

μ : coefficient d'absorption massique.

La densité $\rho\frac{1}{2}$, pour laquelle $\frac{n}{n_0} = \frac{1}{2}$ permet de calculer μ à partir de la relation précédente,

on a $$\frac{1}{2} = e^{-\mu \rho\frac{1}{2}}$$

d'où $$\log \frac{1}{2} = -0{,}693 = -\mu\rho\frac{1}{2}$$

où $$\mu = \frac{0{,}693}{\rho\frac{1}{2}}$$

$\rho\frac{1}{2}$ est une valeur caractéristique de l'absorption d'un rayonnement β, on l'appelle la couche demi-absorbante.

Selon le mode opératoire ainsi décrit, on peut étudier l'absorption de rayonnements β de différentes énergies, ce qui permet de construire les courbes correspondantes.

Ainsi la courbe (fig. 10) est celle que nous avons tracée pour ^{32}P.

Il est facile sur une telle courbe de déterminer la valeur de la couche demi-absorbante. La courbe obtenue sur papier semi-logarithmique est bien une droite, le ^{32}P étant mono-énergétique.

Si on répète l'expérience pour différents rayonnements β mono-énergétiques, on peut établir la relation existant entre l'énergie maximum d'un rayonnement β et son coefficient d'absorption massique. En effet, si nous représentons en coordonnées logarithme sur logarithme, le coefficient d'absorption massique en fonction de l'énergie maximum nous obtenons une droite d'équation (fig. 11) :

$$\mu = 0{,}017\ E_m^{-3/2}$$

Em : Energie maximum du rayonnement.

Si les conditions ne sont pas tout à fait les mêmes :
— dimensions de la source,
— distance source-compteur. Par exemple les lois gardent même forme mais coefficient différent.

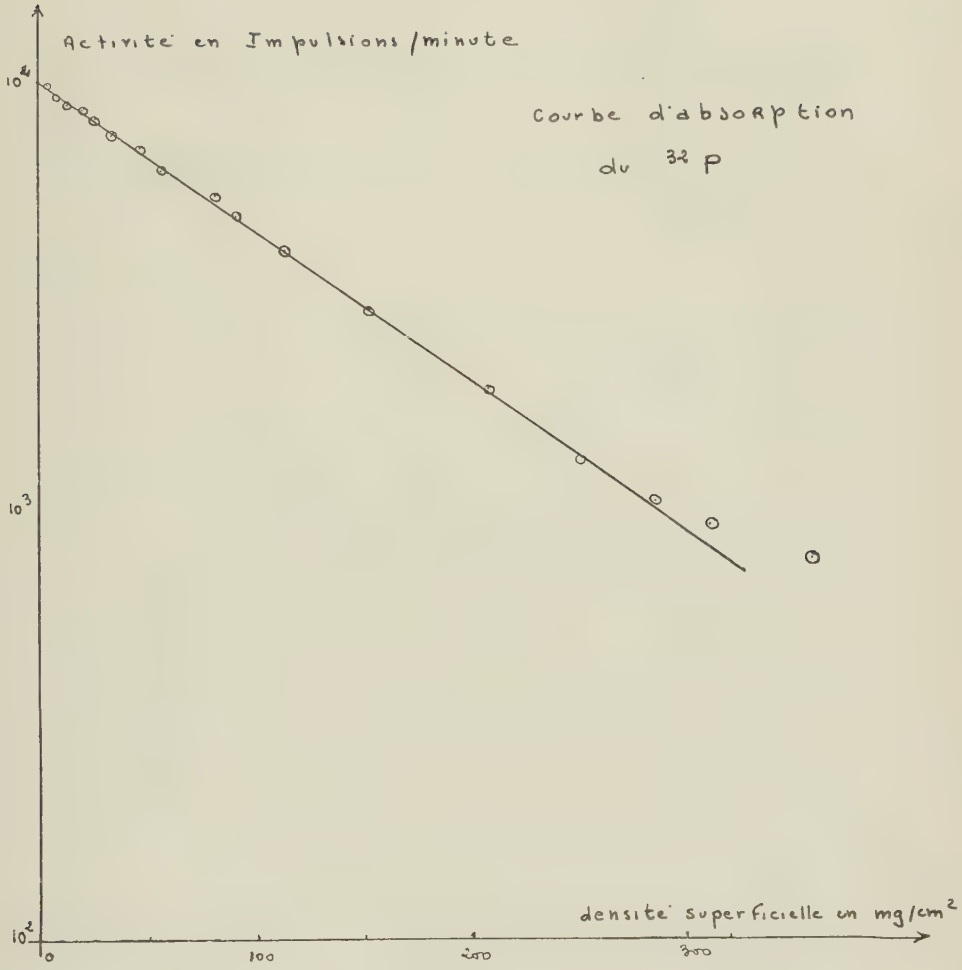


Figure 10.

β poly-énergétique :

Lorsque le radio-élément émet plusieurs groupes de β, la courbe représentative peut en général être décomposée facilement en plusieurs courbes dont chacune correspond à 1 β, et le coefficient d'absorption massique correspondant obéit encore à la loi

$$\mu = 0{,}017\ E_m^{-3/2}$$

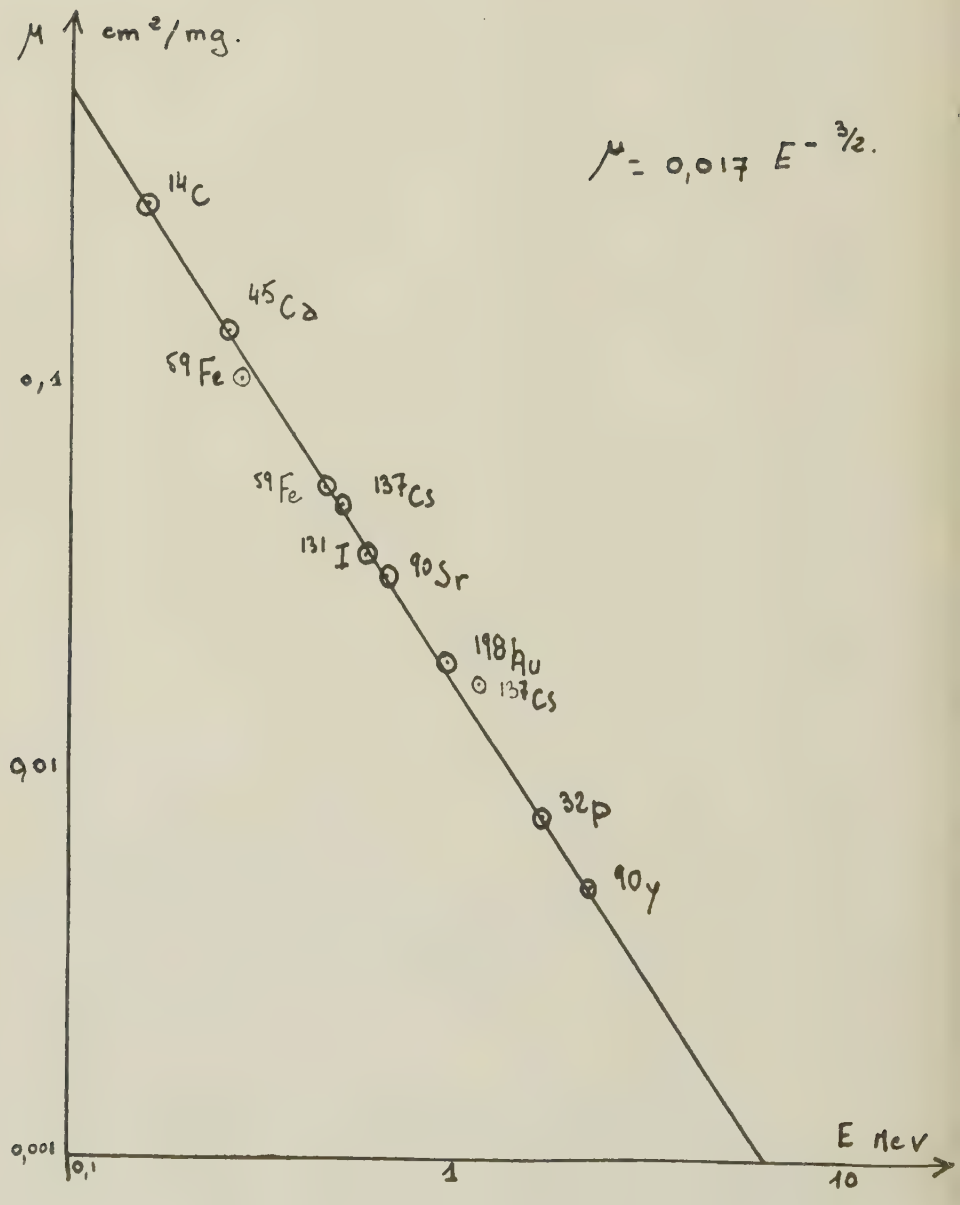

μ cm²/mg.
μ = 0,017 E^-3/2.
14C
45Ca
59Fe
59Fe
137Cs
131I
90Sr
198Au
137Cs
32P
90Y
0,1
0,01
0,001
0,1
1
10
E Mev

Figure 11.

Exemple 131 I (fig. 12) :

La courbe complexe obtenue pour 131 I, peut être décomposée en 4 droites correspondant aux 4 groupes de β émis par l'iode.

Application au contrôle de la nature et de la pureté d'un radio-élément.

Premier temps :

Dans un premier temps nous dresserons les courbes des éléments mono-énergétiques les plus couramment employés en médecine.

Nous serons ainsi en possession d'un certain nombre de courbes que nous aurons soin de porter sur un même graphique (fig. 13).

Si nous recevons un radio-élément que nous n'avons jamais eu, sa courbe d'absorption sera tracée.

Pour les éléments poly-énergétiques, nous ne construirons pas la courbe dans sa totalité, celle-ci n'étant pas une droite peut entraîner des erreurs. Nous nous bornerons à construire uniquement un certain nombre de points, chaque point correspondant à des écrans de densité superficielle déterminée.

Pour les éléments poly-énergétiques, la courbe représentative de l'activité sera la somme des différentes droites correspondantes à chaque groupe de même énergie :

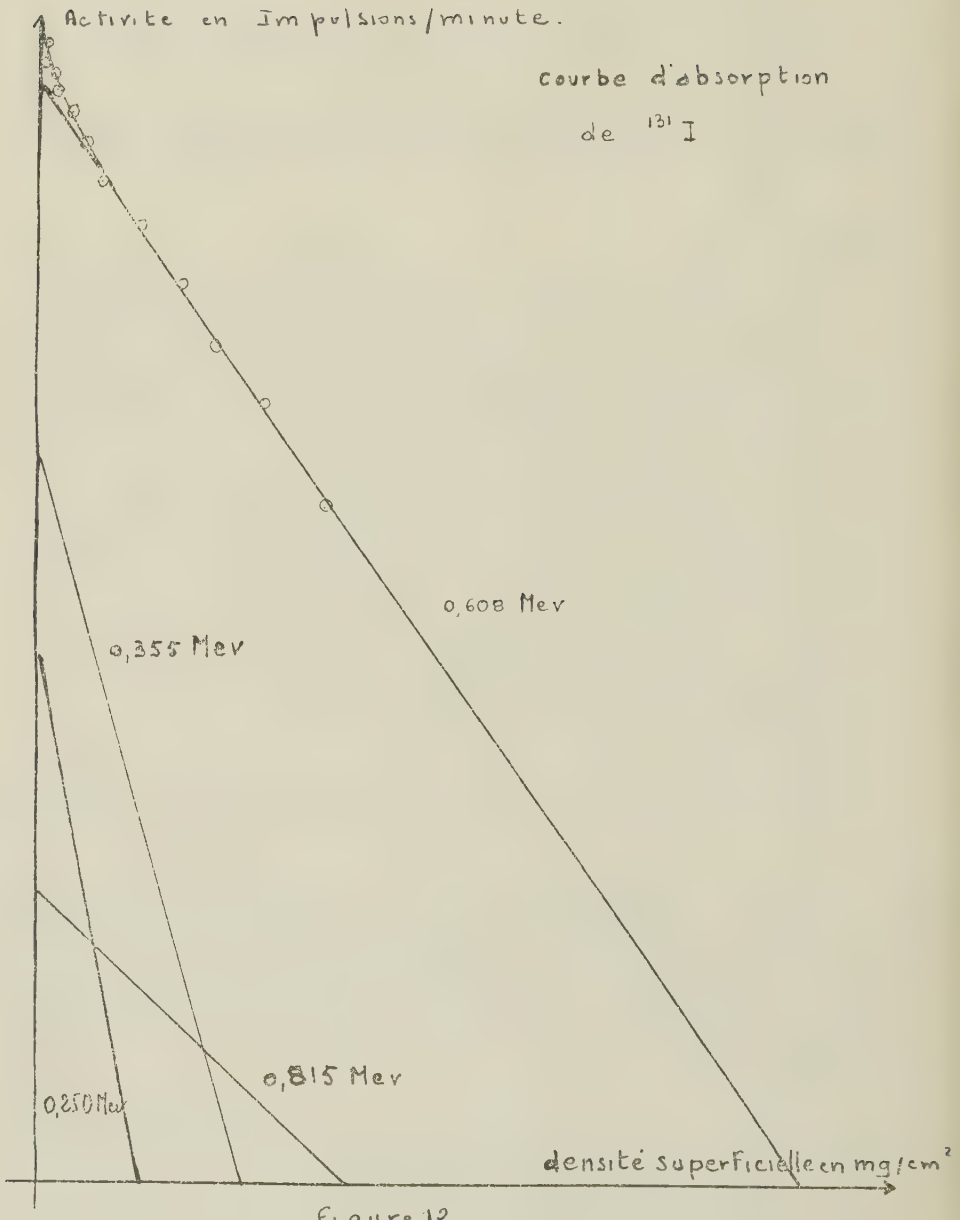
$A_m = A_{1m} + A_{2m} + A_{3m}$ $\quad A_m$ = activité mesurée

ou $A_m = A_1 e^{-\mu^1 d} + A_2 e^{-\mu^2 d} + A_3 e^{-\mu^3 d}$ $\quad A_1, A_2, A_3$ = activité de chaque groupe de β.

Puis nous dresserons les courbes pour les émetteurs par conversion interne, pour ces radio-éléments, on ne peut évidemment pas mesurer la radio-activité β, de tels éléments ont une absorption qui leur est propre et ne répondant pas à des lois définies. Leur courbe d'absorption ne pourra être déterminée qu'expérimentalement.

Deuxième temps :

Nous préparerons à partir de l'échantillon à contrôler une source très mince, nous la recouvrirons d'un écran d'épaisseur assez élevée.


Activité en Impulsions/minute.
courbe d'absorption
de ^{131}I
0,608 Mev
0,355 Mev
0,815 Mev
0,250 Mev
densité superficielle en mg/cm²

. Figure 12 .

Il est nécessaire d'employer un écran de densité superficielle élevée car si nous nous reportons à la figure 13, nous voyons que pour de faibles densités superficielles les causes d'erreurs seront plus grandes en raison du rapprochement des différentes courbes.

Nous faisons une mesure dans les mêmes conditions expérimentales que celles employées pour la détermination des courbes. Nous obtenons ainsi une activité, il nous suffit alors de contrôler si celle-ci correspond à l'activité obtenue pour le même radio-élément avec le même écran.

Résultats :

1° Le chiffre obtenu correspond exactement à celui correspondant sur la courbe : il s'agit bien du même radio-élément ;

2° Le chiffre ne correspond pas : On tombe sur un autre élément.

Deux possibilités :

a) Il y a eu erreur dans l'élément.

b) Il y a une impureté dans le produit.

Le problème dans ce cas-là, sera résolu par la construction de la courbe dans sa totalité point par point.

— On obtient une droite, il s'agit d'un seul radio-élément dont on peut aisément déterminer l'identité.

— On obtient une courbe, il s'agit alors d'une impureté ou d'un autre radio-élément poly-énergétique.

Critiques de cette méthode.

Le premier inconvénient de cette méthode à signaler est le fait que de telles mesures nécessitent la préparation des sources, d'où nécessité de manipulations, ce qui augmente les risques de contamination.

Le deuxième est que cette méthode n'est pas valable pour les émetteurs par capture électronique, mais ce cas est très rare en médecine, seul le Cr 51, présentant cette propriété, est couramment employé.

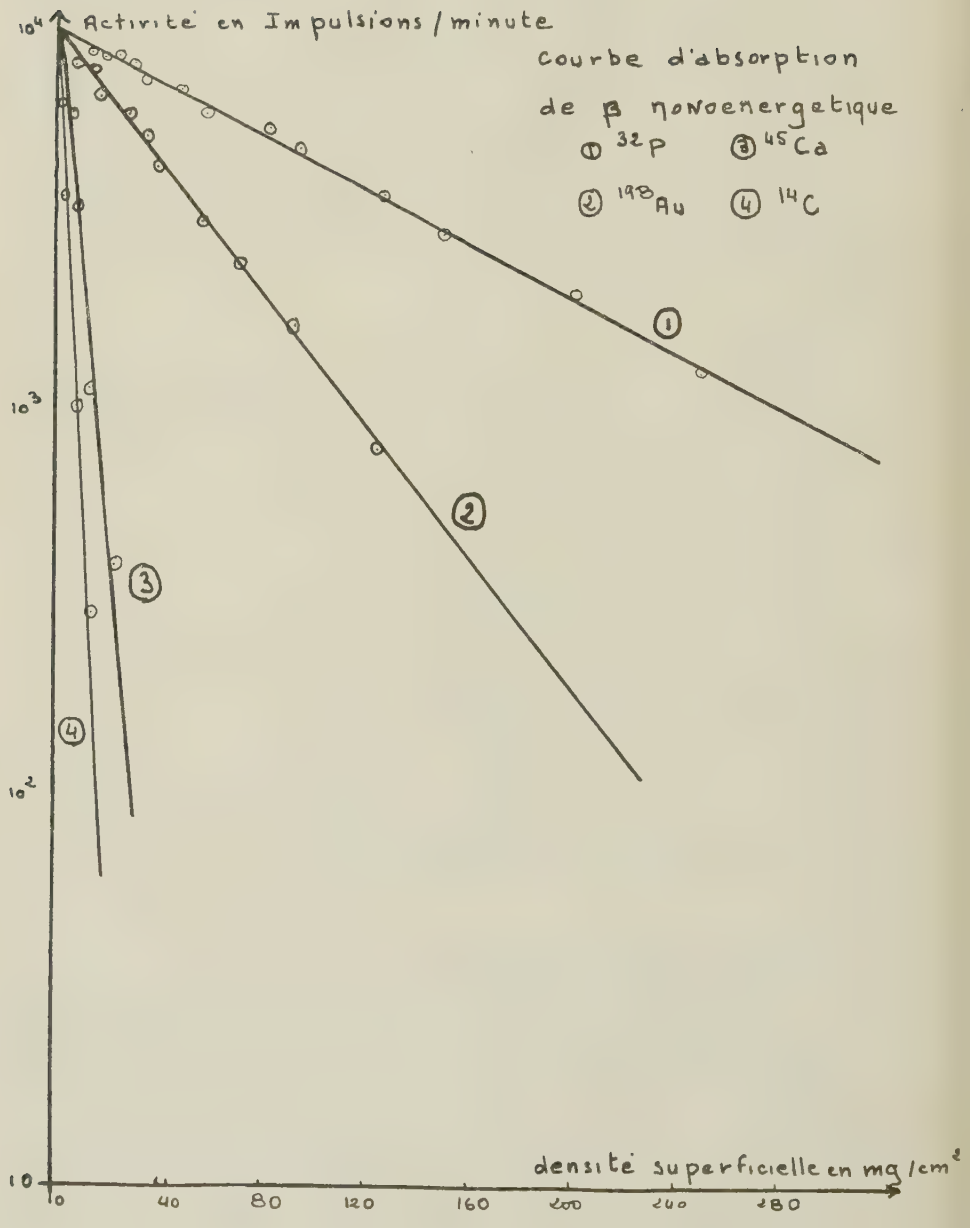

Activité en Impulsions / minute
courbe d'absorption
de β nonoenergetique
① ^{32}P ③ ^{45}Ca
② ^{198}Au ④ ^{14}C
10^4
10^3
10^2
10
densité superficielle en mg/cm²
0
40
80
120
160
200
240
280
①
②
③
④

Figure 13

B) Etude spectrométriaue du rayonnement.

Principe de la spectrométrie β ou γ :

La spectrométrie a pour but d'obtenir des impulsions électriques de hauteur proportionnelle à l'énergie des particules détectées, et de compter ces impulsions en fonction de leur énergie.

Les méthodes spectrométriques sont assez diverses. Le principe des appareils varie selon que l'on a à étudier un rayonnement β ou un rayonnement γ.

Les appareils les plus couramment utilisés en pratique médicale sont les spectromètres à scintillation.

Les spectromètres à scintillation.

Description générale.

Le scintillateur :

Les scintillateurs sont des composés chimiques dans lesquels les molécules excitées par une radiation, reviennent instantanément à leur état fondamental en émettant un photon dans le visible ou l'ultraviolet ; ce phénomène est appelé fluorescence.

Chaque particule incidente aboutit par son absorption à l'excitation d'un certain nombre de molécules, qui émettent chacune un photon pour revenir à leur état normal. La somme de ces photons émis représente une scintillation. L'énergie lumineuse qui se dégage ainsi sous forme d'une scintillation est proportionnelle à l'énergie cédée par la particule incidente.

La nature du scintillateur varie selon la particule que l'on veut mesurer, ainsi il existe des scintillateurs pour rayonnements β ou γ.

Le photomultiplicateur (fig. 14) :

Le photomultiplicateur est une cellule photo-électrique un peu complexe. Il est constitué d'une photocathode en regard de laquelle est placé le scintillateur. Un photon lumineux émis par le scintillateur frappe la photocathode qui, à son tour, va émettre un électron. Cet électron négatif est attiré par une première électrode appelée dynode qui est portée à un potentiel de 100 à 200 volts. L'électron sera donc accéléré, et en venant frapper cette première dynode, va à son tour, grâce à son énergie cinétique, lui arracher un grand

nombre d'électrons secondaires qui, à leur tour, sont attirés par une deuxième dynode portée à un potentiel plus élevé.

Ainsi, en raison du nombre important de dynodes, la radiation incidente a donné naissance à un nombre important d'électrons : il y a eu multiplication. Tous ces électrons sont finalement captés par l'anode, où va se produire une chute de tension qui pourra atteindre 1 volt pour un petit nombre correspondant de photo-électrons émis par la photocathode. Cette chute de tension de 1 volt sera amplifiée et mesurée.

principe d'un photomultiplicateur.

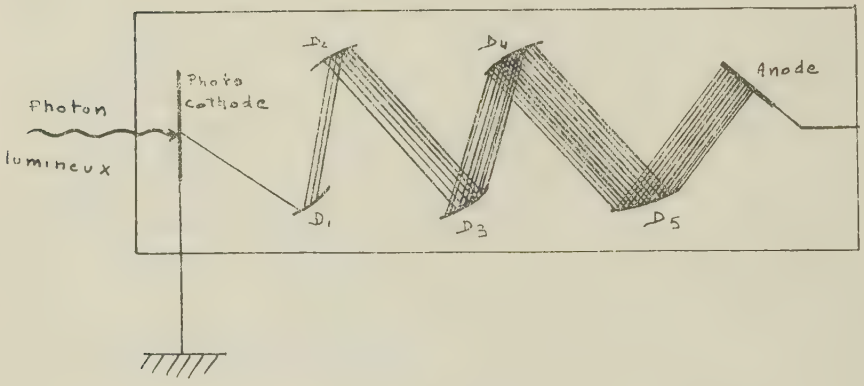


Figure 14.

Le pré-amplificateur :

Chaque impulsion délivrée à la sortie par le photomultiplicateur est captée par un amplificateur dont la qualité essentielle est d'être proportionnel. L'impulsion qu'il délivrera à sa sortie sera proportionnelle à l'énergie des électrons incidents.

Donc, pour une particule incidente, nous obtenons, après les différents passages, à la sortie du pré-amplificateur des impulsions, qui sont proportionnelles au nombre de particules incidentes, et d'amplitude proportionnelle à leur énergie.

Sélecteur d'amplitude :

Les impulsions émises par le pré-amplificateur sont captées par un sélecteur d'amplitude, celui-ci analyse l'énergie de ces impulsions et les classe en fonction de cette énergie. Ce sélecteur fonctionne comme une fenêtre : il ne sélectionne que les impulsions dont les énergies sont comprises entre deux limites fixées par avance. La largeur de la fenêtre est fixe, mais on peut faire varier son seuil inférieur, ce qui permet d'explorer toute l'échelle des énergies.

Echelle de comptage :

Les impulsions sélectionnées par le sélecteur seront comptées par une échelle, nous pourrons ainsi en déplaçant la fenêtre, compter les impulsions énergie par énergie. Il existe des appareils plus perfectionnés, appelés spectromètres multicanaux : dans de tels appareils toutes les impulsions sont analysées et classées en fonction de leur énergie dans différents canaux, ainsi tout le spectre énergétique est exploré à la fois, ces appareils fonctionnent grâce à l'adjonction d'une mémoire.

Nous venons de décrire le principe général du spectromètre, en application pratique, c'est-à-dire pour faire la spectrométrie β ou γ, seule la nature du scintillateur changera.

Spectrométrie β.

Dans la spectrométrie β le scintillateur le plus couramment employé est un cristal d'anthracène. Le rayonnement β arrivant au contact du scintillateur va céder à ce dernier toute son énergie, en arrachant des électrons aux orbites des atomes, créant ainsi des ions. Les électrons secondaires perdent une partie de leur énergie critique en excitant les molécules du milieu. Cette excitation correspond à l'amputation d'une quantité définie d'énergie, immédiatement restituée par retour à l'état fondamental sous forme d'un photon.

La spectrométrie β nécessite l'emploi de scintillateurs de Z peu élevé, pour éviter le phénomène de rétrodiffusion.

Résultats :

Tous les β n'ont évidemment pas le même spectre. Nous avons vu dans la première partie de ce travail qu'un groupe de β se caractérise par son énergie maximum. Ici, contrairement à ce que nous allons voir pour les spectres γ, la forme du spectre importe peu, on s'attachera surtout à déterminer l'énergie maximum.

Exemple d'un spectre β : ^{32}P *émetteur* β *mono-énergétique* (fig. 15) :

Ce spectre a été obtenu au laboratoire à l'aide d'un cristal d'anthracène. Le spectromètre utilisé est un spectromètre à 128 canaux.

Nous voyons qu'il est très facile de déterminer ainsi l'énergie maximum du β émis par le phosphore 32.

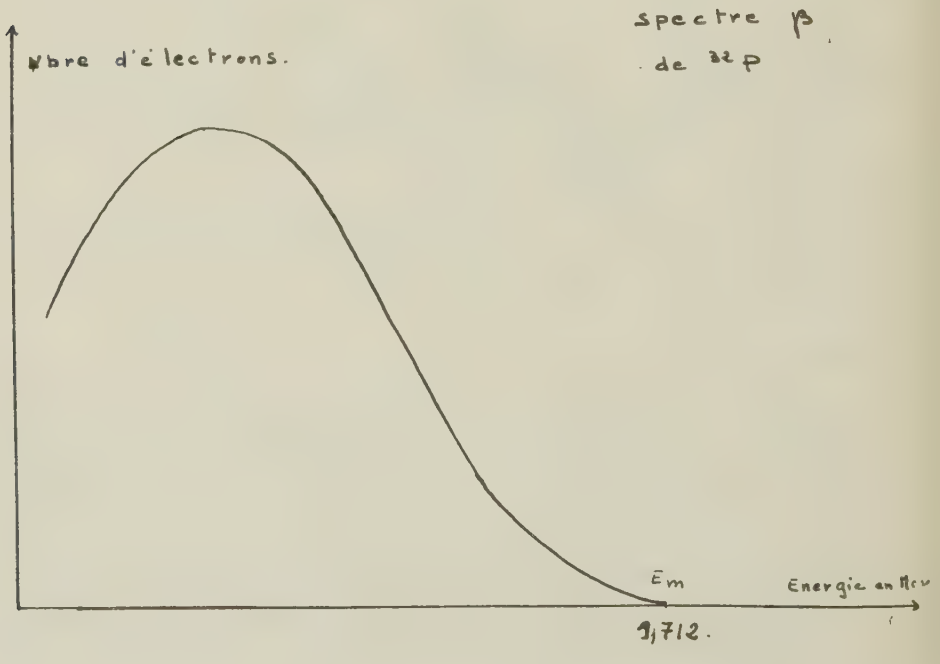


Figure 15

Spectrométrie γ.

Dans la spectrométrie γ, le scintillateur le plus couramment utilisé, est constitué par un halogénure de sodium activé au thallium.

La radiation arrivant au contact du scintillateur va céder son énergie de trois façons différentes :

Par effet photo-électrique :

Au cours de ce processus le γ perd la totalité de son énergie dans le choc avec un électron de l'atome. Cet électron est retenu dans sa couche par une certaine énergie, donc pour qu'il soit arraché et qu'il y ait effet photo-électrique, il faut que le rayonnement possède au moins une énergie aussi grande, il existe donc un seuil photo-électrique.

Par effet Compton :

Dans ce cas, le photon γ ne cède qu'une partie de son énergie à un électron libre supposé au repos, et change de direction, en même temps le rayonnement change de fréquence car il a perdu une partie de son énergie.

L'effet Compton permet une perte d'énergie comprise entre zéro et une valeur maximale correspondant au cas où le photon incident revient en arrière.

Par production de paires électroniques :

Lorsque les rayonnements γ incidents possèdent une énergie suffisante $\geqslant$ à 1,02 Mev, il peut y avoir matérialisation du photon en un positon et un électron qui se partagent l'énergie restante, compte tenu des 1,02 Mev consommés. Généralement le positon s'annihile rapidement par collision avec un électron et se dématérialise en produisant deux rayons γ opposés de 0,51 Mev.

Chacun de ces effets peut se produire en premier lieu sans qu'il soit possible de prédire lequel. Seules les lois de la probabilité peuvent être énoncées.

Résultats :

Les spectres γ obtenus à l'aide d'un spectromètre à scintillation ne seront donc pas des spectres de raies comme le laissait supposer l'étude théorique (fig. 8 : spectre γ théorique de l'iode 131). En arrière des pics correspondant aux différents γ, nous obtiendrons des pics beaucoup moins importants correspondant à l'effet Compton.

Contrairement au spectre β, le spectre γ sera surtout caractérisé par sa forme générale et l'identification de ces différents photopics.

Exemple d'un spectre γ ^{131}I *émetteur* γ *poly-énergétique* (fig. 16) :

Le spectre de l'iode 131 a été obtenu au laboratoire en utilisant un scintillateur de iodure de sodium active au Thallium ; monté sur le spectromètre à 128 canaux. Sur un tel spectre apparaissent nettement les différents photopics correspondants aux différents γ. Nous voyons que chaque pic est suivi d'un pic beaucoup plus étalé représentant l'effet Compton.

Causes d'erreur :

Il faudra prendre soin d'effectuer le spectre d'un échantillon ayant une activité pas trop élevée. En effet, au cas où l'activité de l'échantillon est trop importante, les dynodes du photomultiplicateurs sont submergées et les impulsions qu'elles délivrent ne sont plus proportionnelles aux énergies des radiations incidentes.
Exemple (fig. 17) :

Nous avons pris une source très active d'iode 131 de l'ordre de 56 mC, et nous avons étudié le spectre γ d'une telle préparation en faisant varier la distance séparant la source du scintillateur. Nous constatons qu'en éloignant la source le spectre devient identifiable, le fait d'éloigner la source n'ayant pour but que de faire diminuer l'activité.

Utilisation pratique de la spectrométrie.

Le premier problème qui se présente à nous sera celui de l'étalonnage : ici il est moins critique que pour la mesure de l'activité.

En fait, il suffit d'avoir un spectre de chacun des éléments que l'on utilise : soit que l'on ait fait le spectre soi-même, soit que l'on ait un catalogue.

Le problème important de la spectrométrie sera de déterminer les caractéristiques de l'appareil :

Temps de résolution :

Comme dans tous systèmes de comptage, lorsque une impulsion arrive, l'appareil se trouve bloqué, et ainsi il existe un temps mort

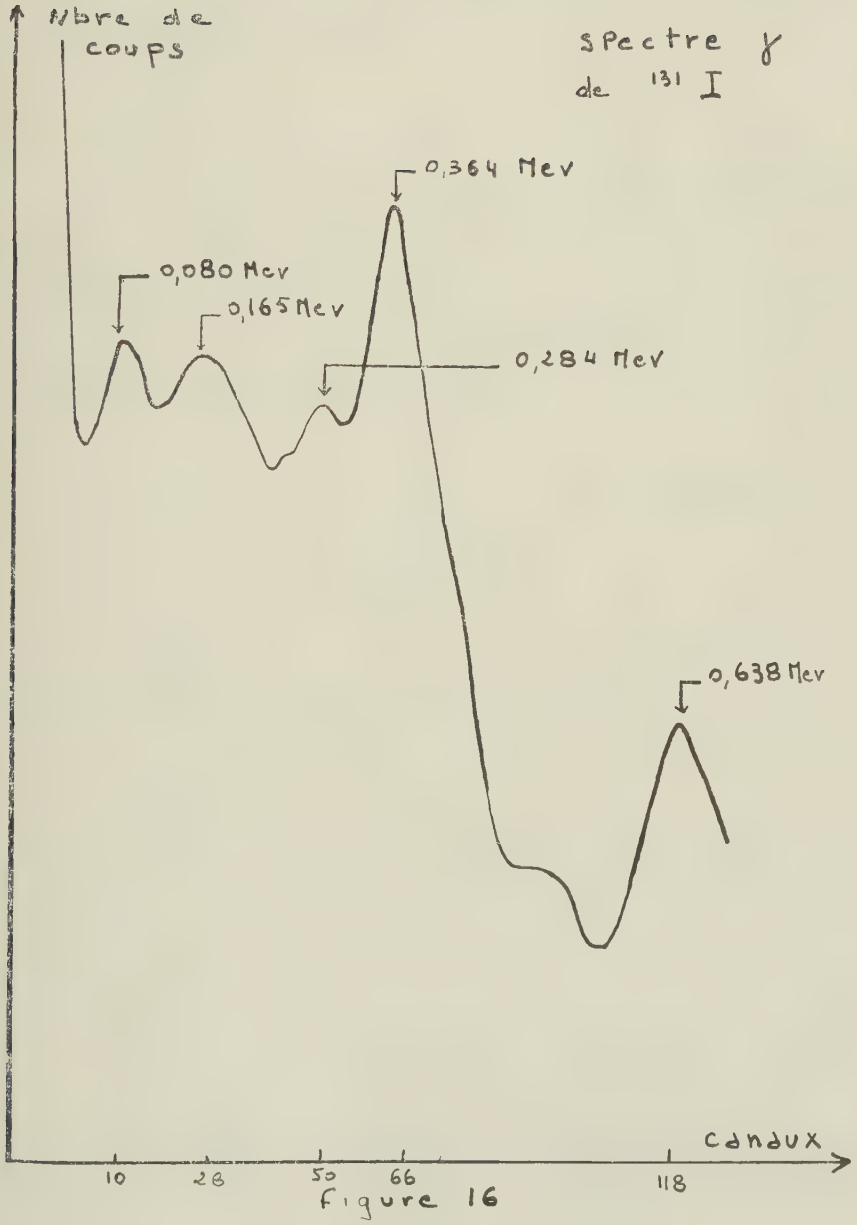
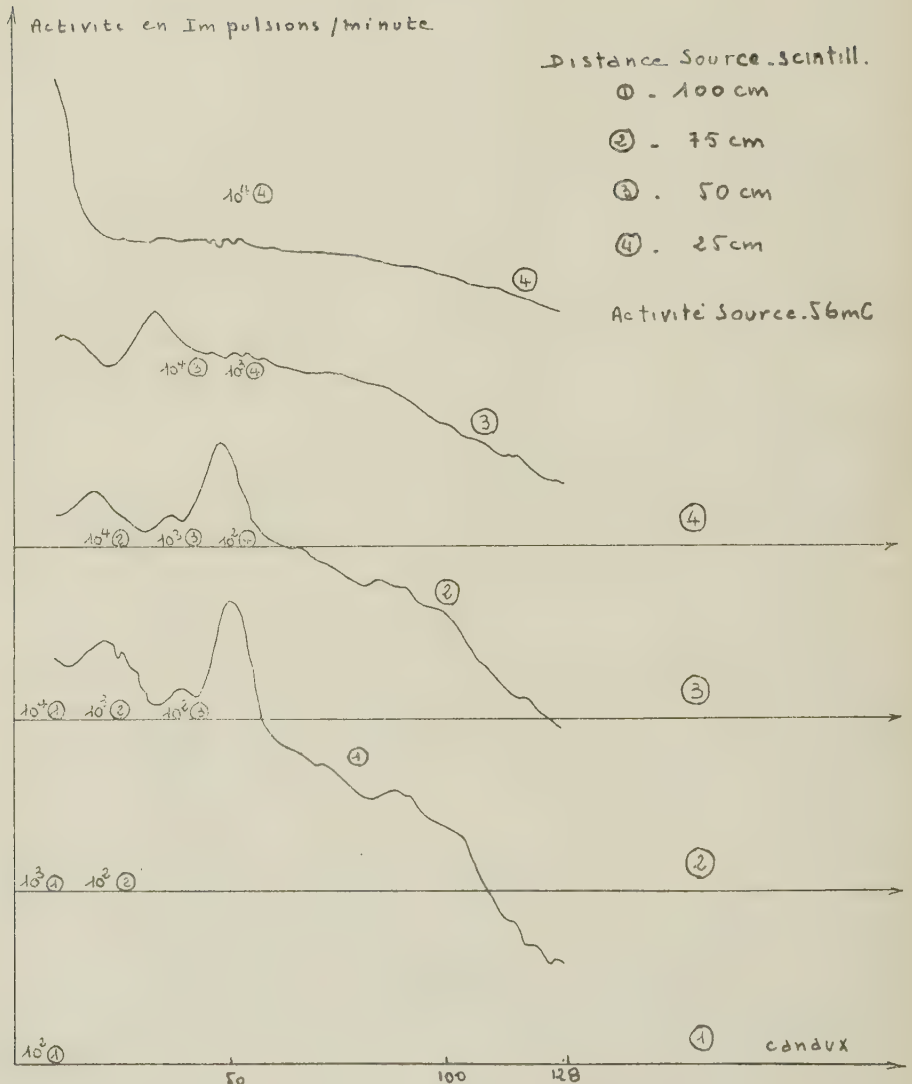

Nbre de coups
Spectre γ de 131 I
0,364 Mev
0,080 Mev
0,165 Mev
0,284 Mev
0,638 Mev
canaux
10
28
50
66
118

figure 16



. Figure 17.

pendant lequel les impulsions arrivant ne sont pas comptées. Il existe cependant des spectromètres pourvus d'un dispositif de correction de coïncidence, de tels appareils travaillant à temps prédéterminé, lorsqu'une impulsion arrive et est analysée, le temps de

comptage est suspendu, ainsi le temps de la mesure est supérieur au « temps machine », qui correspond au temps prédéterminé par l'utilisateur.

Efficacité :

L'efficacité d'un spectromètre fait intervenir de nombreux facteurs : en pratique, on la rapporte au rapport du nombre de γ émis sur le nombre de γ entrant dans le photopic du spectre.

Connaissant ainsi les caractéristiques du spectromètre, il suffira alors de l'étalonner. On étalonne le numéro du canal à énergie ; cet étalonnage pourra se faire avec des étalons à longue période, d'où il n'est pas nécessaire de posséder une source étalon du radio-élément dont on veut faire de spectre.

EN CONCLUSION

Nous avons à notre disposition trois méthodes pour contrôler l'identité et la pureté d'un radio-élément :

— La mesure de sa période : méthode peu rapide, mais simple et précise.

— Le contrôle de l'énergie du rayonnement β, méthode un peu moins rapide que la précédente, exigeant des préparations, donc des manipulations, mais très précise, et utilisable pour tous les radio-éléments utilisés en médecine, car elle mesure le rayonnement β.

— La spectrométrie β ou γ est de beaucoup la plus rapide de toutes les méthodes, elle est très précise, elle donne d'excellents résultats avec les émetteurs γ, donc elle est restrictive sur ce point.

CHAPITRE III

CONTROLE DE L'ACTIVITÉ D'UN RADIOÉLÉMENT

Le contrôle de l'activité du radio-élément sera la deuxième opération de contrôle qu'effectuera l'utilisateur de radio-élément.

I. PRINCIPE GÉNÉRAL DES MESURES

Nous avons à notre disposition deux méthodes de mesure de l'activité.

Mesure absolue :

Une telle technique mesurera le rayonnement β. Il y a un seul β par désintégration, il faut que tous les β puissent être détectés. Une telle mesure sera rendue possible grâce à l'utilisation de compteur Geiger-Muller à 2π ou 4π. Le compteur de Geiger-Muller 4π voit la source sous un angle solide de 4π, donc toutes les particules peuvent être détectées et comptées, ceci nécessite l'emploi de sources ponctuelles. Dans les compteurs 2 π, la source est vue par le compteur sous un angle solide de 2 π. Ce tels compteurs sont plus faciles à réaliser. Il est à noter que si le support de la source est constitué par des métaux lourds (Z élevé), les phénomènes de back-scatting sont très importants, et de tels compteurs fonctionnent pratiquement comme un compteur 4 π.

Mesure relative :

La mesure se fera en deux temps : dans un premier temps on fera une mesure sur un échantillon d'activité rigoureusement connue, et de même nature que l'échantillon à mesurer ; dans un deuxième on mesurera l'activité de la source.

Cette mesure en deux temps est nécessaire pour éviter toutes

causes d'erreurs dues à l'appareil. Le rendement des appareils varie pour chaque radio-élément, donc cela consistera à faire un étalonnage préalable pour le radio-élément considéré.

Pour la première mesure, nous avons à notre disposition des sources étalon ou des sources de référence.

Source étalon :

Il existe des sources étalon des différents radio-isotopes utilisés en médecine et en biologie (I, P, Na, Au...). La source étalon se caractérise par son activité connue avec précision (soit A micro-Curies).

Du fait de la décroissance, une source donnée ne peut être utilisée indéfiniment, on la commande quand on en a besoin.

La détermination de l'activité du radio-élément reçu de Saclay se fait en deux temps :

Dans le premier, on étudie la radio-activité de la source étalon. L'appareil de mesure choisi (compteur Geiger, chambre d'ionisation, compteur à scintillation...), permet d'obtenir une lecture a. Selon l'appareil choisi, a sera soit un nombre d'impulsions par minute, soit une intensité de courant d'ionisation.

Dans le deuxième temps, sans changer les conditions géométriques, on remplacera la source étalon par l'échantillon à mesurer. La déviation obtenue est alors x :

L'activité X de l'échantillon est :

$$X = \frac{x}{a} \times A$$

Pour que cette mesure relative soit valable, il faut que la source et l'échantillon soient placés dans les mêmes conditions :

— géométriques (position relative par rapport à l'instrument de mesure dimensions des sources),
— physiques et chimiques,
— même identité des sources en raison de l'efficacité de l'appareil, variable selon le radio-élément considéré.

Identité des conditions géométriques :

a) Les particules sont émises dans toutes les directions (fig. 18). L'appareil de mesure n'en intercepte qu'une partie, ainsi sur la

figure 18 : 1, 3, 6 et 7 ne sont pas interceptées. Le pourcentage de particules interceptées dépend pour un détecteur donné des dimensions de la source, de sa nature, de sa distance.

Le corollaire de ces conditions est la nécessité de placer la source étalon et l'échantillon au même endroit par rapport à l'appareil.

b) Le radio-élément constituant la source étalon ou l'échantillon sont placés sur un support. Ce dernier va réfléchir vers le détecteur certaines particules émises dans sa direction : c'est ce qu'on appelle la rétrodiffusion (fig. 18 : 5). Le support joue un rôle particulièrement important lorsqu'il s'agit d'un rayonnement β de grande énergie.

L'importance relative de cette réflexion est fonction de la nature, de l'épaisseur et de la forme du support. La rétrodiffusion sera d'autant plus importante que le support aura un numéro atomique plus élevé, aussi sera-t-il nécessaire d'utiliser des supports de même nature pour la source et l'échantillon.

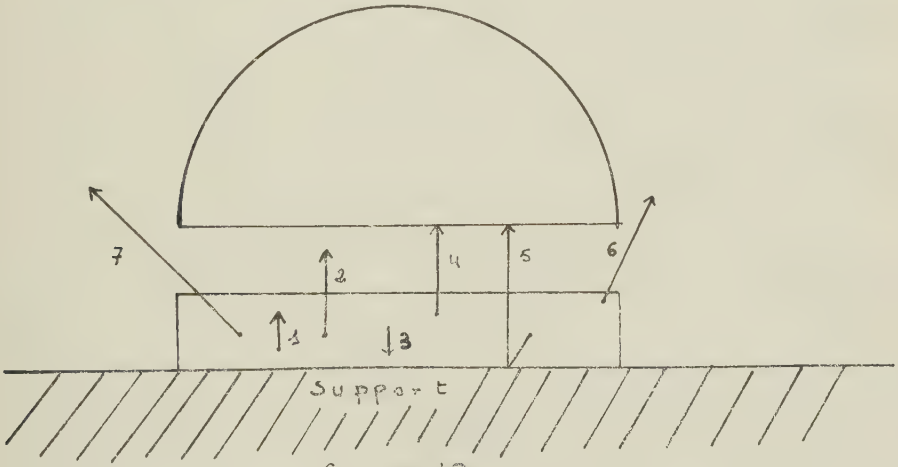


figure 18

Identité des caractères physiques et chimiques :

Auto-absorption :

Quand l'épaisseur de la source est importante, une partie du rayonnement est absorbée par la source, et est ainsi soustraite à la

mesure (fig. 18 : 1). Ce phénomène d'auto-absorption est très faible pour les rayonnements γ. Il prend une très grande importance lorsqu'il s'agit d'émission de rayonnements β de faible énergie (bêta mou). Ce problème se pose notamment pour ^{14}C, ^{35}S et ^{45}Ca. Il faudra donc s'assurer que l'auto-absorption est la même pour la source étalon et pour l'échantillon.

La mesure ne pourra être considérée comme valable que si la source étalon et l'échantillon ont la même épaisseur.

On pourra tourner cette difficulté en calculant l'activité spécifique réelle correspondant à une épaisseur zéro.

On la déterminera expérimentalement en faisant des mesures d'activité d'échantillons d'épaisseurs croissantes. Sur un papier millimétré nous porterons en abscisses l'épaisseur en mg/cm² et en ordonnée le logarithme du nombre de coups comptés par mg.

La courbe d'absorption des β étant une exponentielle, la courbe ainsi obtenue devra être sensiblement une droite.

En extrapolant cette droite (fig. 19) pour une épaisseur zéro, nous obtiendrons à l'intersection de celle-ci avec l'axe des ordonnées, l'activité A_0 en coups par mg s'il n'y avait pas eu de phénomènes d'auto–absorption.

Cette méthode nécessite la préparation de nombreux échantillons, donc de nombreuses manipulations, augmentant les dangers d'irradiation et de contamination.

Il est possible de calculer théoriquement l'auto-absorption.

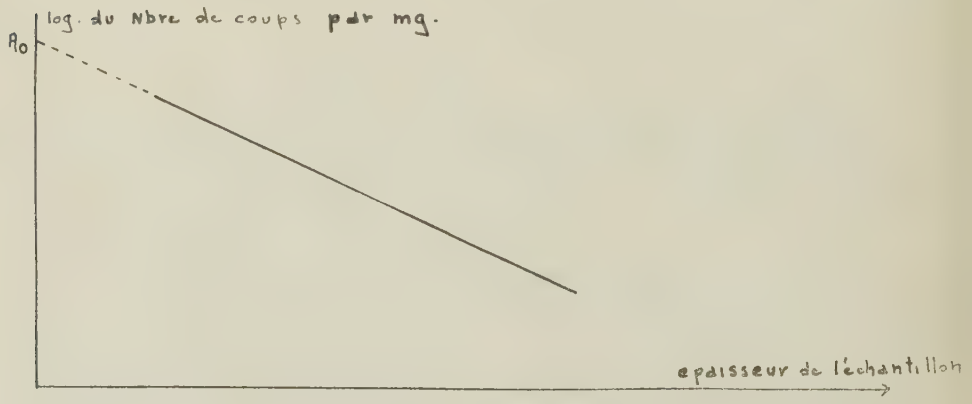


figure 19

L'équation de la courbe d'absorption du rayonnement β monoénergétique est une exponentielle. De cette équation Henriques et Libby en ont déduit une formule de correction pour l'autoabsorption.

$$I = I_0 \frac{1 - e^{-ud}}{ud}$$

où : I = intensité transmise à la surface de l'échantillon.

I_0 = intensité totale.

u = coefficient d'absorption linéaire à travers la matière dont est fait l'échantillon.

d = épaisseur en mg/cm².

u peut être calculé à partir de la demi-épaisseur ($d_1/_2$), c'est-à-dire épaisseur pour laquelle l'intensité est diminuée de moitié (l'absorption étant toujours considérée comme exponentielle).

On a alors

$$I = \frac{I_0}{2}$$

$$Ln2 = ud_1/_2$$

$$u = \frac{Ln\ 2}{d_1/_2} = \frac{0{,}693}{d_1/_2}$$

Il est bien entendu que cette condition, si elle est indispensable pour des radio-éléments émetteurs de rayonnements β mous, ne présente qu'un intérêt secondaire pour les émetteurs β durs, et surtout pour les émetteurs γ.

En fait, pour avoir une mesure correcte, on s'en tiendra à une identité des densités superficielles des deux échantillons à mesurer.

Lorsqu'un échantillon de masse M est réparti uniformément sur une surface d'aire S, sa densité ou masse superficielle est

$$d_s = \frac{M}{S}$$

Elle a les dimensions d'une masse par unité de surface, et s'exprime en mg/cm².

Identité des écrans :

Lorsqu'on veut mesurer l'activité d'un échantillon émetteur $\beta + \gamma$, on a intérêt à mesurer le rayonnement γ qui est plus facilement détectable. Dans ce cas, on se trouve dans l'obligation d'éliminer le rayonnement β ; les rayons β sont facilement arrêtés par un écran placé entre la source et l'appareil détecteur. En cas de telles mesures, il sera indispensable d'interposer les mêmes écrans dans les deux séries de mesures, car l'efficacité de l'écran dépend de son poids par cm^3, donc de sa densité, de son épaisseur. Donc nécessité d'utiliser des écrans de même épaisseur et de constitution identique.

II. SOURCES ÉTALON - SOURCES DE RÉFÉRENCE SOURCES SIMULÉES

Pour mesurer l'activité des échantillons, nous avons à notre disposition trois types de sources :

1. Sources étalon :

La source étalon est une source radio-active préparée avec un radio-isotope donné (source étalon de ^{131}I, source étalon de ^{32}P, etc.).

Les sources étalon sont caractérisées par le fait que leur nombre de désintégrations par unités de temps est rigoureusement connu. Du point de vue de leurs caractères physiques, nous devons distinguer deux types différents de sources étalon.

a) *Source étalon liquide :*

La première catégorie est constituée par des solutions étalonnées qui, après stérilisation, sont livrées en ampoules de verre scellées.

Pour chaque solution, l'activité spécifique, c'est-à-dire l'activité par unité de volume qui s'exprime par exemple en mC ou en μC par cm^3, est rigoureusement connue.

b) *Source étalon solide :*

Les sources solides qui peuvent être ponctuelles sont disposées sur un support approprié. Il existe des types normalisés de sources étalon solides.

Ainsi l'on peut disposer de sources émettrices β, de sources émettrices $\beta + \gamma$, de sources émettrices α.

Les sources étalon présentent un grand inconvénient ; dans les cas de radio-isotopes à courtes périodes elles ne sont utilisables que pendant un temps de 3 à 4 périodes, il sera donc nécessaire de les renouveler.

Pour pallier à cet inconvénient, on a été amené à utiliser deux autres types de sources.

2. Sources de référence :

Une source de référence est une source radio-active de géométrie invariable, et de période suffisamment longue pour éviter une décroissance trop rapide de son activité.

La source de référence demeure identique à elle-même au cours du temps.

Exemple :

Il existe des sources de référence β émettrices, constituées par de l'oxyde d'urane ($U\ O_2$) en suspension dans une résine polymérisée et se présentant sous forme de disques de diamètre et d'épaisseur définis, sertis dans une coupelle d'aluminium.

Ces sources sont destinées essentiellement à suivre et à contrôler les variations d'efficacité des compteurs Geiger-Muller.

Dans ce cas-là, ce n'est pas l'activité spécifique de la source qui est connue, mais le nombre d'impulsions délivré par un compteur de Geiger-Muller de caractéristiques connues, lorsque la source est présentée dans des conditions définies.

3. Sources simulées :

Pour pallier au renouvellement des sources étalon de courte période, on a imaginé des sources constituées par un mélange de radio-isotopes de longue période dont le rayonnement global a sensiblement la même composition spectrale que le radio-isotope de courte période que l'on a voulu simuler.

Les sources simulées visent à être des sources étalon, car elles sont étalonnées en nombre de désintégrations par unités de temps du radio-isotope simulé.

Exemples :

Une source de ^{238}U en équilibre avec ses descendants, et de densité superficielle déterminée, émet un rayonnement dont la composition spectrale est sensiblement la même que celle de ^{32}P.

Un mélange de ^{137}Cs en équilibre avec le ^{140}Ba, et une petite quantité de ^{60}Co simule le rayonnement de ^{131}I.

4. Fournitures :

En France, il est possible de se procurer les sources de référence et les sources étalon qui sont fournies par les établissements suivants :

LABORATOIRE DE MESURE DES RADIO-ÉLÉMENTS
Centre nucléaire de Saclay
par Gif-sur-Yvette (Seine-et-Oise)

SERVICE DE RADIO-ACTIVITÉ DU CONSERVATOIRE NATIONAL DES ARTS ET MÉTIERS
Paris (3e)

Ainsi le C.E.N. de Saclay prépare à des dates fixes des solutions étalonnées d'un certain nombre de radio-éléments. Il est possible de se procurer sur simple demande le calendrier annuel des livraisons établi en début d'année.

Il est prévu pour chaque radio-élément trois activités : 1mC/ml - 20 μC/ml - 0,5 μC/ml.

Parmi les éléments faisant l'objet de livraisons périodiques nous pouvons noter parmi les plus utilisés en médecine :

^{14}C, ^{32}P, ^{51}Cr, ^{60}Co, ^{90}Sr, ^{137}Cs...

Par contre, pour les radio-éléments à période plus courte, comme ^{24}Na, ^{131}I, ^{42}K, ^{198}Au, les demandes sont satisfaites lorsqu'un nombre suffisant de celles-ci a été rassemblé.

Pour les sources étalon solides, il existe un certain nombre de types normalisés, dont les caractéristiques sont strictement définies : activité, support.

Il en est de même pour la source de référence β à base d'oxyde d'urane.

Les sources simulées ne sont pas fabriquées en France pour le moment.

III. APPAREILS DE MESURE - CONTROLE - ÉTALONNAGE

A) Principaux types d'appareils.

a) *Compteur de Geiger-Muller :*

Le compteur de Geiger-Muller demeure l'appareil de mesure courant de l'activité bêta. Par contre, il est très peu adapté à la mesure du rayonnement gamma, parce que son rendement est très faible. Le compteur de Geiger-Muller est très sensible et permet de mesurer de très faibles activités.

Description :

Schématiquement le compteur de Geiger-Muller comprend :

— Une enveloppe de révolution, conductrice, ou dont la face interne est conductrice, qui constitue la cathode du compteur.

— D'un fil métallique placé sur l'axe de l'appareil : l'anode.

— L'ensemble est rempli d'un gaz rare et d'un gaz organique.

— Une fenêtre : portion de l'enceinte par où pénétrera le rayonnement que l'on voudra détecter. Cette fenêtre est importante du point de vue de sa densité superficielle, car nous savons que les radiations β sont facilement arrêtées, et il sera ainsi possible, par un choix judicieux de la densité superficielle de la fenêtre, de sélectionner les rayonnements bêta d'énergie différente.

Fonctionnement :

Le passage d'une particule à travers le gaz a pour résultat la formation de paires d'ions.

Le gaz à l'intérieur duquel se forment les ions se trouve placé dans un champ électrique, constitué par le filament qui est porté à un potentiel de l'ordre de 1 000 à 1 500 volts, et l'enceinte métallique qui a un potentiel nul. Ainsi les ions positifs se dirigeront vers la cathode et les ions négatifs vers l'anode.

Lorsque les électrodes seront atteintes par les ions, ceux-ci se déchargeront, et on obtiendra des impulsions dans le circuit des électrodes.

La hauteur des impulsions sera proportionnelle au nombre d'électrons qui arriveront sur l'anode.

Les ions formés ont une vitesse qui dépend de la force à laquelle ils sont soumis, c'est-à-dire, de l'intensité du champ électrique existant entre les deux électrodes, et de la nature et de la densité du gaz qu'ils auront à traverser.

Le compteur de Geiger-Muller fonctionne avec un champ électrique très intense, surtout au voisinage de l'anode.

Dans le compteur de Geiger-Muller l'ion produit par la particule est à l'origine d'ionisations successives grâce à l'intensité du champ. Ainsi, à partir d'un ion initial unique, nous obtenons un très grand nombre d'ions secondaires, tertiaires... dans tout le compteur.

La dimension, la durée et d'une manière générale, tous les caractères de l'impulsion sont indépendants des ionisations primaires.

Les ions positifs sont beaucoup plus lourds que les négatifs, compte tenu de ceci leur déplacement sera beaucoup plus lent, et la durée d'une impulsion sera de l'ordre de 100 à 200 μs.

Temps de résolution d'un compteur de Geiger-Muller :

Pour que deux impulsions successives puissent être individualisées, il est nécessaire qu'elles soient séparées par un intervalle de temps minimum t.

Ce temps, qui est le temps mort du compteur, est appelé temps de résolution, il est de l'ordre de 2.10^{-4} secondes au maximum. Si les désintégrations étaient réparties de façon homogène dans le temps, le compteur pourrait détecter $\frac{1}{2.10^{-4}} = 5\,000$ impulsions/seconde. Mais il n'en est jamais ainsi, et même pour des chiffres inférieurs, deux particules peuvent se succéder avec des intervalles de temps inférieurs a Δ t, et il n'y en aurait qu'une de détectée.

Pour éviter cet inconvénient et les erreurs que cela peut entraîner, il sera bon de ne faire des mesures qu'avec des échantillons pour lesquels ce phénomène, c'est-à-dire la coïncidence dans le

temps de deux impulsions, puisse être négligée. S'il n'en est pas ainsi, on fera une correction de coïncidence de la façon suivante :

— Soit θ le temps de résolution du compteur exprimé en minutes,

— n le nombre de particules détectées pendant t minutes.

Par suite de ce temps mort, le compteur n'a travaillé en fait que pendant le temps :

$$t - n\,\theta$$

L'activité mesurée est donc :

$$\frac{n}{t - n\,\theta}$$

qui peut être très supérieure à $\frac{n}{t}$ impulsions/minute que l'on aurait calculée sans effectuer la correction de coïncidence.

Utilisation pratique du compteur de Geiger-Muller :

Si nous faisons varier la différence de potentiel existant entre les deux électrodes du compteur, nous constatons (fig. 20) que pour des bas voltages le compteur ne compte rien. La détection commence à partir d'un seuil V_0, et le nombre de particules détectées augmente jusqu'à ce que la tension ait atteint la valeur V_1. Le taux de comptage n'augmente alors presque plus : on a atteint la région du plateau du compteur. Si on continue d'augmenter la tension, on voit qu'à partir d'une valeur V_2 le palier est dépassé ; une seule ionisation primitive a suffi pour provoquer une série de décharges secondaires.

Le compteur est d'autant meilleur que le plateau est plus étendu et moins incliné sur l'axe des abscisses. Avant toute utilisation d'un compteur Geiger-Muller, il faudra déterminer la tension optima de fonction que l'on choisit au milieu du palier. Les mesures ne pourront être comparées que si elles sont effectuées avec la même tension.

Différents types de compteur Geiger-Muller :

Nous ne nous étendrons pas sur tous les types de compteurs Geiger-Muller, car ils sont très nombreux.

Le plus intéressant pour notre but de contrôle est le compteur de Geiger-Muller à fenêtre mince, parce que nous avons vu que la radiation β est facilement arrêtée. Il existe des compteurs dont la densité superficielle de la fenêtre ne dépasse pas 125 $\mu g/cm^2$.

Les compteurs Geiger-Muller à liquide possédant un réservoir annulaire autour du compteur, sont d'un emploi commode pour la mesure du rayonnement β dur.

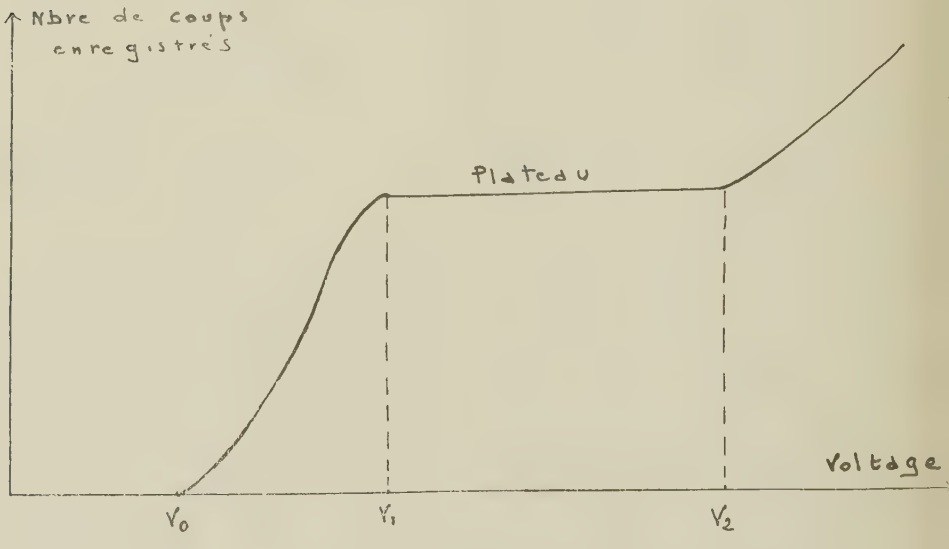


Figure 20

b) *Le compteur à scintillation :*

Ce type de compteur ne se distingue de celui utilisé en spectrométrie et que nous avons déjà décrit, que par un système associé plus simple. On ne recherche pas à obtenir des impulsions de hauteur proportionnelle à l'énergie abandonnée par les particules, mais simplement à détecter des particules. Un tel compteur est donc constitué uniquement par un cristal accolé à un photomultiplicateur. Les impulsions sont transmises à une échelle de comptage simple par l'intermédiaire d'un pré-amplificateur non proportionnel.

Les spectromètres à scintillations tels que nous les avons décrits, peuvent évidemment servir en compteur à scintillation, c'est-à-dire qu'ils peuvent servir à une mesure d'activité. En effet :

1° Le nombre d'impulsions mesurées dans le pic photo-électrique est proportionnel à l'activité de la source.

Soit n_x le nombre d'impulsions comptées dans le pic photo-électrique pour un échantillon d'activité X.

Soit n_a le nombre d'impulsions comptées dans la même région du spectre pour un étalon d'activité A.

L'activité X cherchée est donnée par :

$$X = A. \frac{n_x}{n_a}$$

2° Par construction, tous les spectromètres peuvent fonctionner en mesure globale, c'est-à-dire qu'ils se contentent de compter le nombre d'impulsions détectées sans les répartir suivant leur énergie.

Les faire passer de la fonction spectrométrie à la fonction mesure globale revient donc à les transformer en compteurs à scintillations.

Ce mode de mesure d'activité évite l'opération qui consiste à relever le contenu de chaque canal du photopic et à en faire la somme. Elle est donc plus rapide.

Différents types de compteurs à scintillations :

Les compteurs à scintillations sont surtout destinés à la mesure du rayonnement γ et du rayonnement α. Notre propos se limitera donc aux détecteurs pour γ, à cristal puits et ceux à cristal cylindrique.

1. *Scintillateur à cristal puits* (fig. 21) :

Ce type de scintillateur est surtout utilisé pour mesurer l'activité de sources de faible volume. La source est directement plongée dans le cristal, qui est creusé en son centre, par une cavité. Les mesures successives devront être faites de telle manière que l'échantillon et la source étalon soient placés à la même hauteur dans le puits en raison des conditions géométriques des mesures.

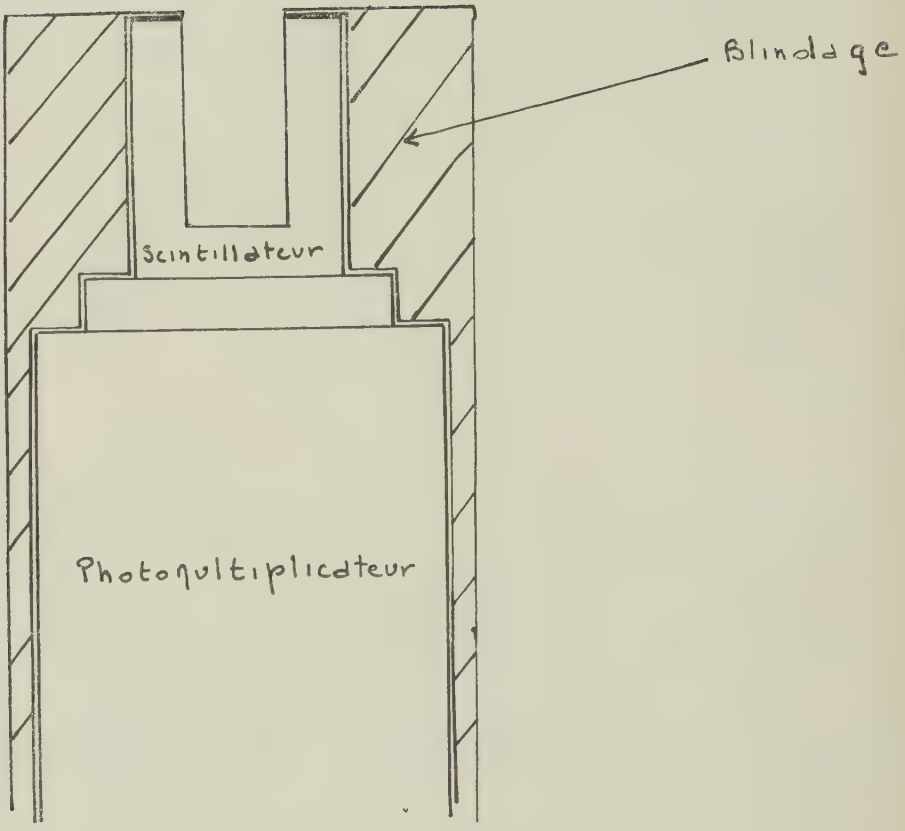


Fig. 21

2. *Scintillateurs à cristal cylindrique* (fig. 22) :

Le cristal cylindrique a son axe confondu avec celui du blindage en plomb, et repose par sa base sur le photomultiplicateur. Son extrémité supérieure est recouverte d'un disque opaque le protégeant contre la lumière et d'un disque de plexiglass de 1 cm d'épaisseur destiné à arrêter le rayonnement bêta. La mesure est effectuée en posant directement l'échantillon à contrôler contenu par exemple dans une fiole, sur le cristal. Le cristal sera surmonté d'un cylindre creux dont l'axe coïncide avec celui du cristal, et dont le diamètre est environ 3 à 4 fois plus grand, la fiole sera ainsi logée

dans ce cylindre, de manière que les déplacements latéraux ne dépassent pas 1 mm. Ainsi des mesures successives pourront être effectuées dans les mêmes conditions géométriques.

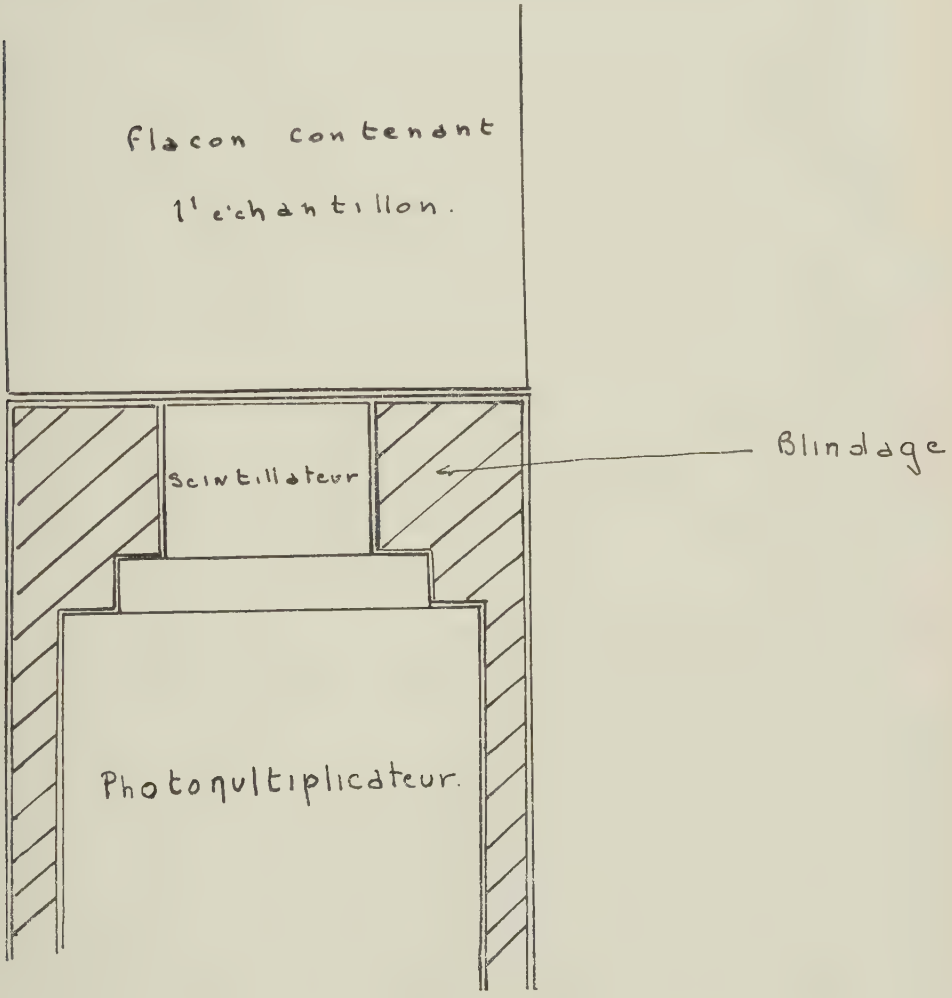


Fig. 22

c) *Les chambres d'ionisation :*

Il existe différents types de chambres d'ionisation, nous décrirons ici un type spécialement adapté à nos mesures de contrôle

La chambre est en forme de puits, elle est constituée par deux

cylindres co-axiaux, le volume clos compris entre les deux cylindres est rempli d'un gaz. Une grille isolée plonge dans ce gaz et constitue l'électrode positive de la chambre. L'échantillon à mesurer est placé directement dans le puits. Les radiations émises par l'échantillon vont créer dans le gaz des ionisations. Contrairement au compteur de Geiger-Muller, ici la tension appliquée entre les deux électrodes n'est pas suffisante pour créer des ionisations secondaires, tertiaires... Ainsi les charges électriques qui arrivent sur l'anode sont dues uniquement aux ions primaires formés, donc la hauteur des impulsions délivrées par une chambre d'ionisation est toujours très faible, d'où nécessité d'employer de grands moyens d'amplification.

Ces appareils sont évidemment peu sensibles, mais ont pour eux l'intérêt d'être très stables et de construction simple.

Intérêt des chambres d'ionisation.

Mesure des activités élevées :

Lorsque le flux de radiation est très intense, on peut enregistrer aisément un courant dont l'intensité est rigoureusement proportionnelle à ce flux. Ainsi la chambre d'inoisation trouvera une excellente application dans le contrôle des doses reçues par les manipulateurs de radio-éléments, et le contrôle des doses préparées pour être distribuées aux malades.

B) Choix des méthodes propres à la mesure du rayonnement.

a) *Rayonnement* β.

1. *Faible activité :*

Pour la mesure du rayonnement β faible, nous utiliserons le compteur de Geiger-Muller. Nous avons vu que dans le compteur de Geiger-Muller les caractères d'une décharge sont indépendants de la quantité d'ionisation initiale.

Pour la mesure du ^{14}C par exemple, on pourra utiliser un compteur de Geiger-Muller à fenêtre mince (1 mg/cm^2). Par la diversité des formes de compteur Geiger-Muller, on est toujours en mesure de trouver une forme permettant une mesure dans les conditions géométriques optima.

2. *Forte activité :*

Si l'activité à mesurer devient plus importante, on utilisera la chambre d'ionisation. Dans cette éventualité, nous mesurons alors

la radiation de freinage due à l'absorption de chaque particule dans le gaz. Ces appareils très peu sensibles sont cependant suffisamment précis pour mesurer les activités importantes.

b) *Rayonnement* γ.

Pour le rayonnement γ, il n'est pas possible de faire appel au compteur de Geiger-Muller, car l'ionisation produite par la particule γ n'est pas suffisante. Aussi utilise-t-on le compteur à scintillation ou la chambre d'ionisation. La mesure du rayonnement γ est plus facile que celle du rayonnement β, aussi, si l'on doit contrôler l'activité d'un radio-élément émetteur $\beta + \gamma$, il y aura intérêt à faire la mesure en utilisant le rayonnement γ.

Le rayonnement γ a un très grand pouvoir de pénétration, cette grande pénétration réduit les phénomènes d'auto-absorption et d'absorption.

Il autorise la réalisation d'appareils avec lesquels les conditions géométriques de mesures sont facilement reproductibles, d'où l'utilisation de compteurs à scintillations ou de chambres d'ionisation.

c) *Contrôle de la fidélité et étalonnage des appareils.*

1. *Etalonnage :*

L'étalonnage de l'appareil n'est pas obligatoire avant chaque mesure, néanmoins il est à souhaiter qu'il soit fait au maximum tous les trimestres, ou après toutes réparations.

Pour étalonner un appareil de mesure, on utilisera une source étalon, ou une source de référence (voir chapitre : Sources), du radio-isotope dont on veut effectuer le contrôle. Ainsi obtient-on la correspondance entre le nombre de désintégrations par unités de temps du radio-isotope considéré et le chiffre lu sur l'appareil.

2. *Fidélité :*

Avant chaque mesure, on doit contrôler la fidélité de l'ensemble de l'appareil de mesure (Compteur ou chambre + circuits électroniques). Ce contrôle de la fidélité se fera à l'aide d'une source de référence, toujours la même.

Si l'on obtient une lecture différente de la lecture précédente habituelle, il faudra vérifier méthodiquement le fonctionnement des diverses parties de l'appareil de mesure.

3. *Cas particulier.*
Chambre d'ionisation à étalonnage multiple :

Il existe des chambres qui donnent une lecture directe de l'activité de la source constituée par différents radio-éléments. Ces appareils sont extrêmement commodes car ils permettent des mesures rapides sur la totalité de l'échantillon reçu.

Principe :

Plaçons dans le puits de la chambre une source β émettrice ou $\beta + \gamma$ émettrice, le rayonnement γ ou la radiation de freinage du rayonnement β font apparaître un courant d'ionisation. Par suite des différences de pénétration de ces rayonnements et par suite de leur différents pouvoirs d'ionisation à :

Une même activité A représentée par I^{131}, ^{24}Na, ^{198}Au..... correspond des intensités dans la chambre d'ionisation :

$$i_{131},\ i_{24},\ i_{198} \text{ différentes.}$$

L'amplificateur donne les tensions correspondantes proportionnelles aux intensités :

$$V_{131}\ ,\ V_{24}\ ,\ V_{198}.$$

On place dans le circuit du galvanomètre des résistances :

$$R_{131}\ ,\ R_{24}\ ,\ R_{198} \text{ telles que l'on ait :}$$

$$\frac{V_{131}}{R_{131}} = \frac{V_{24}}{R_{24}} = \frac{V_{198}}{R_{198}}$$

Le galvanomètre sera donc parcouru dans tous les cas par l'intensité :

$$i_a = \frac{V_{131}}{R_{131}} = \ldots$$

Supposons qu'une activité X d'iode 131 soit placée dans l'appareil, on sélectionne R_{131}, l'intensité lue sera i_x telle que :

$$\frac{i_x}{i_a} = \frac{X}{A}.$$ Ceci est vrai pour n'importe quel élément.

Le même amplificateur fonctionnera avec plusieurs chambres.

Par exemple :

1 chambre pour 5 μC.
1 chambre pour 5 mC.

La déviation totale du galvanomètre est obtenue quand une source d'activité

5 μC est placée dans la première chambre,
5 mC est placée dans la deuxième chambre.

Pour étendre l'éventail de mesure, un diviseur placé dans le circuit peut diviser par 10 ou par 100 l'intensité qui parcourra le galvanomètre ; on obtiendra donc en définitive les échelles de mesures suivantes :

Position du diviseur	Première chambre	Deuxième chambre
1	de 0 à 5 μC	de 0 à 5 mC
1/10	de 0 à 50 μC	de 0 à 50 mC
1/100	de 0 à 500 μC	de 0 à 500 mC

On remarque que la possession de ces deux chambres permet de mesurer avec une bonne précision une activité comprise entre 0 et 500 mC.

EN RÉSUMÉ

La mesure de l'activité des β émetteurs se fera à l'aide d'un compteur de Geiger-Muller.

La mesure de l'activité des β + γ émetteurs se fera à l'aide d'un compteur à scintillations.

Ceci dans le cas où la mesure portera sur une fraction de l'échantillon ou sur de faibles activités.

La mesure de l'activité des β ou des β + γ émetteurs se fera à l'aide d'une chambre d'ionisation lorsque la mesure pourra être faite sur la totalité de l'échantillon.

Nous considèrerons que l'activité est conforme à celle attendue quand elle n'en diffèrera pas de moins de 10 %.

CHAPITRE IV

PROTOCOLES DÉTAILLÉS DONNÉS A TITRE D'EXEMPLE

Dans ce chapitre nous allons étudier l'application des différentes méthodes que nous venons d'analyser, à des émetteurs β et $\beta + \gamma$.

Dans ce qui suit, l'utilisateur est supposé posséder :

— Les courbes d'absorption des β émetteurs mono-énergétiques pour des compteurs β qu'il a établi lui-même et éventuellement :

— 1 spectromètre,

— 1 chambre d'ionisation.

Tout au long de ce chapitre nous allons voir que de nombreuses mesures nécessitent des dilutions préalables.

Il y a deux sortes de dilution possible :

Une dilution précise en ce sens qu'à partir de l'activité spécifique de l'échantillon on effectue des dilutions successives jusqu'à obtenir une activité faible rigoureusement connue.

Une dilution simple en ce sens qu'elle n'a pour but que de diminuer l'activité de l'échantillon sans précision de l'activité exacte, dans ce cas-là, une simple adjonction d'eau sans mesure des volumes suffira.

Premier exemple : ^{32}P.

I. Position du problème.

Caractéristiques :

Le ^{32}P est un émetteur β mono-énergétique dont l'énergie maximum est 1,712 Mev. et sa période 14,30 jours.

Indications du bordereau d'envoi :

Activité spécifique : 2 mC/cm³ le jour de la réception.

II. Choix des méthodes de contrôle.

A) *De l'identité :*

La période du ^{32}P est trop longue, d'autre part il n'émet pas de γ, donc le seul moyen de contrôle consiste à déterminer le coefficient d'absorption de son rayonnement à l'aide du compteur de Geiger-Muller.

B) *De l'activité :*

Au compteur de Geiger après dilution précise.

A la chambre d'ionisation.

III. Mise en application.

Avec le compteur de Geiger-Muller :

Le contrôle de l'identité est effectué après avoir obtenu, grâce à une dilution précise, une activité de 7 000 désintégrations/minute par exemple.

Une première mesure sans écran nous donnera donc 7 000 désintégrations/minute.

Deux nouvelles mesures sont effectuées avec deux écrans de densité superficielle différente.

Ecran 1 : 40 mg/cm², activité mesurée : 5 400 dés./min.

Ecran 2 : 164 mg/cm², activité mesurée : 2 000 dés./min.

La droite obtenue passant par ces trois points à même pente que celle que l'on possède. Il s'agit bien de Phosphore 32, et nous pouvons affirmer qu'il est pur.

Au cours de la même opération, la mesure sans écran nous a donné directement l'activité de l'échantillon.

Avec la chambre d'ionisation :

Ici pas besoin de dilution précise pour le contrôle.

En effet, l'expérience nous a montré que les caractéristiques de la radiation de freinage des β de ^{32}P sont telles que l'activité indiquée par l'appareil en position de ^{59}Fe si on les multiplie par 100, nous donne l'activité vraie.

En conséquence, on place le flacon dans le puits de la chambre, on met sur ^{59}Fe, on lit 120 μC, on multiplie par 100, on a donc 12 mC, l'activité est exacte.

Pour contrôler la nature, un petit étalement après dilution non précise sera mesuré avec le jeu des écrans.

Deuxième exemple : ^{131}I.

I. Position du problème.

Caractéristiques :

L'iode 131 est un émetteur $\beta + \gamma$.

L'énergie maximum du β le plus abondant est 0,608 Mev.

L'énergie du γ le plus abondant est 0,364 Mev.

La période de l'iode 131 est 8,14 jours.

Indications du bordereau d'envoi :

Activité spécifique : 10 mC au jour de la réception.

II. Choix des méthodes de contrôle.

Les méthodes précédentes sont valables puisque l'iode est un émetteur γ et la chambre d'ionisation possède une position pour la mesure directe de l'activité de l'iode 131.

Une seule difficulté : nous ne possédons pas de courbe d'absorption par exemple, car c'est un émetteur β poly-énergétique.

Mais en raison de l'émission γ on pourra utiliser le spectromètre.

III. Mise en application.

Utilisation du compteur de Geiger-Muller :

Même technique que précédemment, et construction à priori de la courbe d'absorption à l'aide de trois points.

Utilisation de la chambre d'ionisation :

Ici, pas de problème, nous obtenons directement l'activité globale de l'échantillon.

Utilisation du spectromètre :

Après dilution, une partie de l'échantillon est passée au spectromètre, qui va nous donner le spectre γ de l'iode 131 facilement identifiable, grâce à ces photopics.

Le spectromètre utilisé en compteur en scintillation nous donnera en mesure globale l'activité de l'échantillon.

Troisième exemple : ^{198}Au.

L'or 198 est émetteur $\beta + \gamma$, donc à priori il n'y a pas de problème particulier. Mais l'or peut être utilisé soit sous forme colloïdale en solution, soit sous forme de grains. C'est ici que peut intervenir une erreur, en effet, un deuxième isotope est utilisé sous forme de grains, il s'agit de l' ^{90}Y, si l'on considère la couleur, ces deux isotopes sont blancs, ils ont une période très voisine, 2,7 jours pour l'or et 2,6 jours pour l'yttrium. Le doute sera levé grâce à l'utilisation des méthodes ci-dessous.

Utilisation du compteur de Geiger-Muller :

La construction des courbes d'absorption fait apparaître deux droites de pentes très différentes (fig. 23) :
^{198}Au : E_m = 0,8 Mev ^{90}Y : E_M = 2,2 Mev.

Utilisation de la chambre d'ionisation :

La chambre d'ionisation possède une position pour l' ^{198}Au, donc mesure directe de l'activité possible, ce qui n'est pas le cas pour l' ^{90}Y.

Utilisation du spectromètre :

Il est évident que seul l'or donnera un spectre gamma caractérisé par son photopic correspondant à son γ d'énergie : 0,28 Mev.

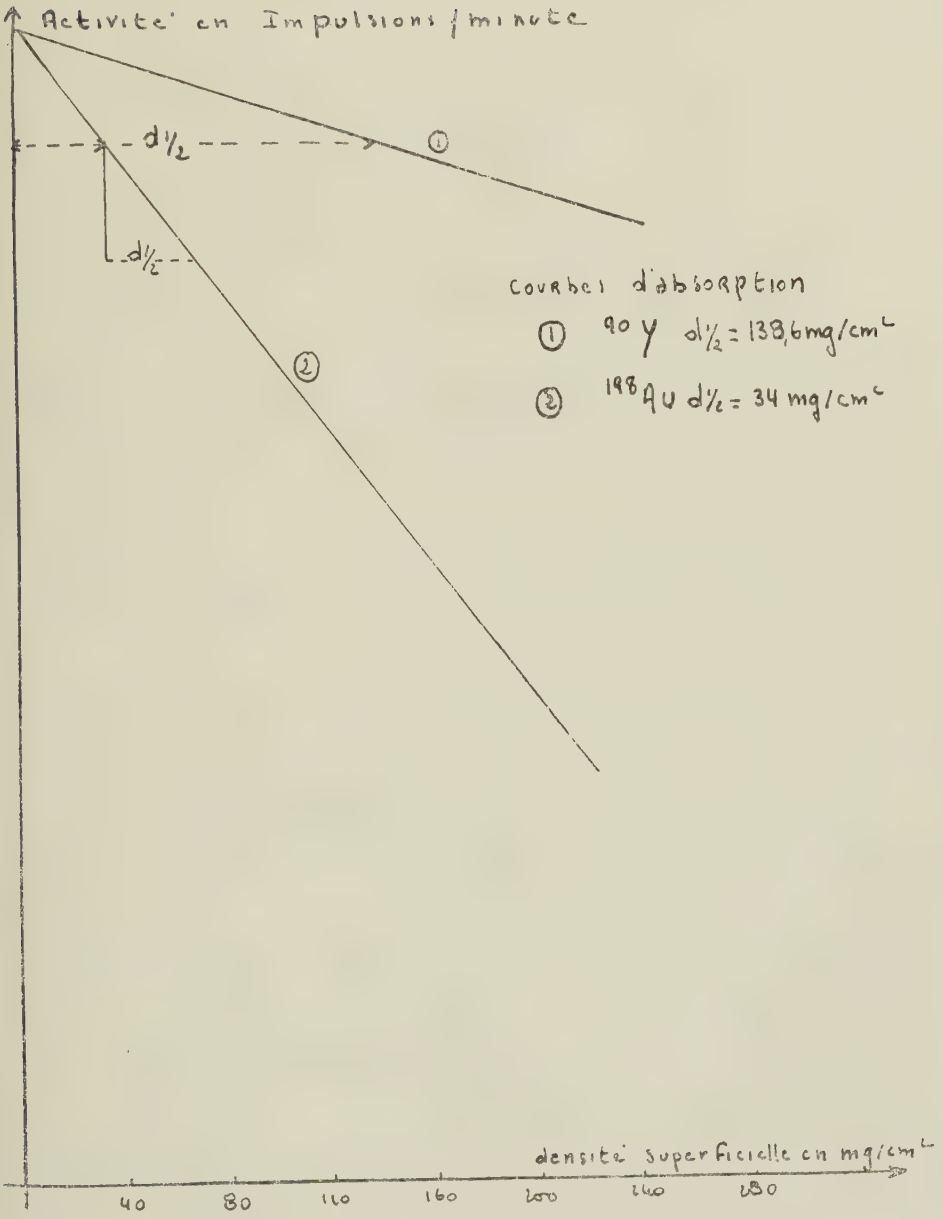

Activité en Impulsions / minute
d½
d½
①
②
Courbes d'absorption
① 90 Y d½ = 138,6 mg/cm²
② 198 Au d½ = 34 mg/cm²
densité superficielle en mg/cm²
40
80
120
160
200
240
280

Figure 23

CONCLUSIONS

I. — Les radio-éléments sont de plus en plus largement utilisés en médecine, soit dans un but diagnostic, soit dans un but thérapeutique. Mais le danger présenté par les rayonnements émis par les corps radio-actifs implique que les radio-éléments doivent être contrôlés, avant d'être administrés au malade, tant en ce qui concerne leur nature, que leur pureté et leur activité.

II. — La période, l'énergie maximum du rayonnement β, le spectre du rayonnement γ, sont des caractéristiques attachées aux radio-éléments, utilisés en médecine, qu'il convient de mesurer quand on se propose d'en contrôler la nature et la pureté.

III. — La période n'est utilisée, pour des raisons pratiques, pour caractériser un radio-élément, que si elle n'excède pas quatre jours.

La détermination du coefficient d'absorption massique de rayonnement β permet de calculer avec une bonne précision, l'énergie maximum de ce rayonnement.

Le contrôle de la nature et de la pureté d'un radio-élément β émetteur peut donc se ramener à rechercher la valeur de ce coefficient.

La construction du spectre du rayonnement γ, quand on possède l'appareillage nécessaire, permet de parvenir au même but.

IV. — Dans le cas d'émetteurs mixtes, le contrôle de l'activité peut être effectué, soit sur le rayonnement β, soit sur le rayonnement γ. Dans tous les cas, il est nécessaire de posséder, soit une source étalon, soit une source de référence.

La mesure des activités de cette source et de l'échantillon soumis au contrôle se feront dans des conditions strictement identiques.

Les appareils utilisés diffèrent selon que les mesures se font :

— sur le rayonnement γ : chambre d'ionisation, compteur à scintillations, spectromètre.

— sur le rayonnement β : chambre d'ionisation en détectant le rayonnement de freinage ; compteur de Geiger-Muller en comptant les particules émises.

V. — Le protocole détaillé des contrôles effectués sur ^{32}P et ^{131}I montre comment les méthodes retenues sont mises en application.

VU et permis d'imprimer
LYON, le 4 décembre 1962

Le Président de la Thèse :
M. Berger.

Le Recteur, Président du Conseil de l'Université :
P. Louis.

VU, le Doyen :
H. Hermann.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Applied gamma-ray spectrometry. — Ed. by C.E. Crouthamel. *Pergamon Press*, 1960.

(2) Aten (A.H.W.). — Correction for bêta particle self-absorption. *Nucleonics*, n° 6, p. 68, 1950.

(3) Bacq (Z.M.), Alexander (P.). — *Principes de radiologie*. Masson-Paris, 1955.

(4) Bayet (M.). — *Physique nucléaire*, pp. 172-214, 1960.

(5) Berger (M.), Moret (R.). — Méthode de contrôle des radio-isotopes. (Projet de notice destinée aux utilisateurs médicaux). Rapport C.E.A.

(6) Beta and gamma-ray spectroscopy. — Kai Siegbahn. North-holland publishing compagny, Amsterdam, 1955.

(7) Blanc (D.) . — Détecteurs de particules, compteurs et scintillateurs. Mécanisme et réalisation. Masson et Cie, Ed., 1959.

(8) Brown (S.C.). — Theory and operation of Geiger-Müller counters. *Nucleonics*, vol. 2, n° 6, p. 10, Juin 1948.

(9) Cohen (Y.). — Une nouvelle classe de médicaments : *Les isotopes radio-actifs. Produits et problèmes pharmaceutiques*, vol. 17, n° 1, p. 3, 1962.

(10) Cohen (Y.), Engelman (C.). — Contrôle de la teneur en ^{129}I des solutions de ^{131}I à usage médical. *Note C.E.A.*, n° 200, 1957.

(11) Cohen (Y.), Ingrand (J.). — Etudes récentes sur le contrôle pharmaceutique des radio-éléments. *Journal de médecine de Bordeaux et du Sud-Ouest*, n° 8, p. 1003, Août 1961.

(12) Cohn (W.E.). — Production of artificial radio activity. *Adv. in Med. and Biol. Physics*, n° 1, p. 117, 1948.

(13) Coltman (J.W.), Marshall (F.H.). — Photomultiplier radiation detector. *Nucleonics*, vol. 1, n° 3, Nov. 1947, p. 58.

(14) Curie (Mme P.). — Radio-activité.

(15) Devoret (R.). — Dangers des radiations atomiques. Eléments de protection. Albert de Visscher, édit., Paris, 1961.

(16) Duquesne (M.), Grégoire (R.), Lefort (M.). — Travaux pratiques de physique nucléaire et de radio-chimie. Masson et Cie, édit., Paris, 1960.

(17) Evans (R.D.). — Fundamentals of radio-activity and its instrumentation. *Adv. in Biol. and Med. Phys.*, n° 1, p. 151, 1948.

(18) Fischer (C.). — Production des radio-éléments artificiels. Rapport C.E.A. 1458. Centre de documentation du C.E.N. de Saclay, 1960.

(19) Gimbergues (H.), Bizollon (CH.A.), Moret (R.). — Mesure absolue de l'activité d'une source bêta émettrice de faible activité spécifique.

(20) Glendenin (L.E.). — Determination of the energy of bêta particles and photons by absorption. *Nucleonics*, n° 2, p. 12, 1948.

(21) Healea (M.). — Bibliography of Geiger and proportional counters. *Nucleonics*, vol. 1, n° 4, p. 68, déc. 1947.

(22) Henriques. — *Ind. Eng. Chem.*, 19, 349, 1946.

(23) Irvine. — Production of radio active isotopes. *U.S. Nav. Med. Bull. Sup.*, Mars 48.

(24) Lacassagne (A.), Gricouroff (G.). — Action des radiations ionisantes sur l'organisme. Masson et Cie, 2e édit., 1956.

(25) Libby (W.F.). — *Phys. Rev.*, 55, 245, 1939.

(26) Paquelier (A.). — Contribution à l'étude du mécanisme d'action biologique des radiations ionisantes. *Thèse*, Lyon, 1961.

(27) *Pharmacopée Française*, 7e édit., 1949, p. 698.

(28) *Radio-éléments artificiels*, Catalogue des préparations du C.E.A. (France) et du C.E.E.N. (Belgique), 1962.

(29) Rainwater (L.J.), Wu (C.S.). — Applications of probability theory to nuclear particle detection. *Nucleonics*, vol. 2, n° 1, p. 42, 1948.

(30) Rainwater (L.J.), Wu (C.S.). - Principes of nuclear particle detection. *Nucleonics*, vol. 1, n° 1, p. 12, Sept. 1947.

(31) Rossi (B.), Staub (H.H.). — Ionization chambers and counters. *Los-Alamos project*, vol. 2, Mc. Craw-Hill. New-York, 1950.

(32) Seaborg (G.T.). — The preparation of radio-active isotopes in "Isotopes in biology and médicine". *Wisconsin university press*, 1947.

(33) Sharpe (J.). — Nuclear radiation detectors. Methuen and Co. LTD, London 1955.

(34) Sharpe (J.), Taykor (D.). — Mesure des rayonnements nucléaires. Dunod, Paris, 1958.

(35) Strohl (A.), Berger (M.). — Les isotopes radio-actifs en biologie. Masson et Cie, Paris, 1946.

(36) Taylor (D.). — Mesurement of radio-isotopes. Méthuen, 1950.

(37) Tubiana (M.). — Les isotopes radio-actifs en médecine et en biologie. Masson et Cie, Ed., 1950.

(38) Visscher (M.), Beckers (C.). — Les isotopes radio-actifs en médecine. Gauthier-Villars et Cie, 1961.

TABLE DES MATIÈRES

INTRODUCTION 11

CHAPITRE I. — Les Isotopes radio-actifs - Rappel de notions générales - Isotopes - Isotopes radio-actifs 15

— Loi de décroissance radio-active 17

— Spectre énergétique 19

— Caractéristiques d'un élément radio-actif - Préparation des radio-éléments artificiels 24

— Propriétés des rayonnements radio-actifs 27

— Conclusion 29

CHAPITRE II. — Contrôle de la nature et de la pureté d'un radioélément - Contrôle de la période d'un radioélément... 31

— Vérification de la nature et de l'énergie du rayonnement 35

— Conclusion 53

CHAPITRE III. — Contrôle de l'activité d'un radioélément - Principe général des mesures 55

— Sources Etalon - Sources de référence - Sources simulées 60

— Appareils de mesure - Contrôle - Etalonnage 63

— Conclusion 73

CHAPITRE IV. — Protocoles détaillés donnés à titre d'exemple

— 1er exemple ^{32}P 75

— 2e exemple ^{131}I 77

— 3e exemple ^{198}Au 78

— Conclusion 80

BIBLIOGRAPHIE 82